

**Diplomarbeit**

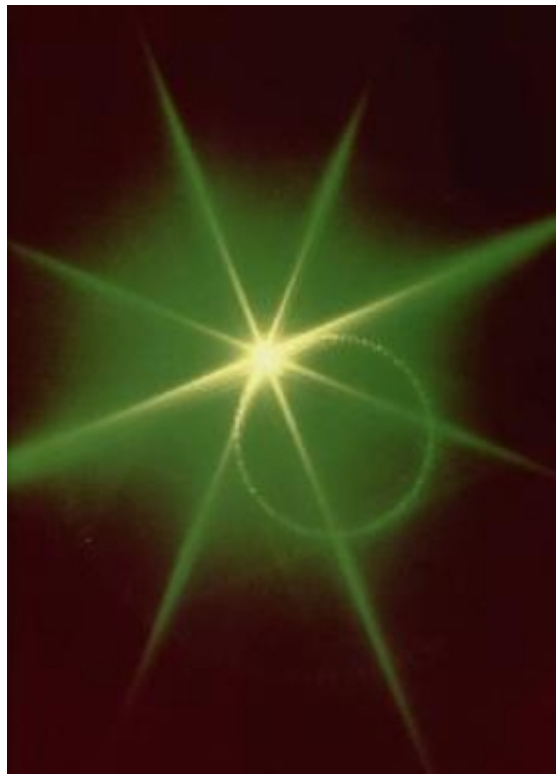
# Zeitliche Kompression von Laserpulsen in einem Filament

Milan Rudloff

Institut für Kernphysik (IKF)  
der Johann Wolfgang Goethe - Universität  
Frankfurt am Main

September 2007





***"Das Bekannte ist endlich, das Unbekannte unendlich; geistig stehen wir auf einem Inselchen inmitten eines grenzenlosen Ozeanes von Unerklärlichem. Unsere Aufgabe ist es, von Generation zu Generation ein klein wenig mehr Land trocken zu legen."***

Thomas Henry Huxley

Erklärung:

Ich versichere hiermit, dass ich die vorliegende Arbeit selbständig verfasst,  
keine anderen als die angegebenen Hilfsmittel verwendet und sämtliche  
Stellen, die benutzten Werken im Wortlaut oder dem Sinne nach entnommen  
sind, mit Quellen- bzw. Herkunftsangaben kenntlich gemacht habe.

Frankfurt am Main, September 2007

# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>3</b>
<b>2</b>	<b>Theoretische Grundlagen</b>	<b>9</b>
2.1	Quantensysteme in starken elektromagnetischen Strahlungsfeldern . . . . .	9
2.1.1	Keldysh-Theorie . . . . .	9
2.1.2	AC-Stark-Verschiebung . . . . .	11
2.1.3	Multiphotonen-Ionisation . . . . .	11
2.1.4	Above-Threshold-Ionization . . . . .	12
2.1.5	Tunnelionisation . . . . .	13
2.1.6	Over-The-Barrier-Ionization . . . . .	17
2.1.7	Recollision und Rekombination . . . . .	19
2.1.8	Mehrfachionisation . . . . .	21
2.2	Eigenheiten der Moleküle . . . . .	22
2.2.1	Rotation und Vibration . . . . .	23
2.2.2	Rotations-Raman-Effekt . . . . .	24
2.2.3	Dissoziation . . . . .	25
2.2.4	Nomenklatur von Molekülorbitalen und -zuständen . . . . .	26
2.3	Die Ausrichtung von Molekülen . . . . .	28
2.4	Filamentation und Kompression von Laserpulsen . . . . .	32
2.4.1	Ultrakurze Laserpulse . . . . .	32
2.4.2	Nichtlineare Optik . . . . .	35
2.4.3	Pulskompression durch Filamentation . . . . .	37
<b>3</b>	<b>Experiment</b>	<b>41</b>
3.1	Laser . . . . .	42
3.1.1	Die Erzeugung kurzer Laserpulse . . . . .	42
3.1.2	Das Laser-System am IKF . . . . .	45
3.2	Interferometer und delay-stage . . . . .	49
3.3	Aufbauten zur Pulskompression . . . . .	51
3.4	Charakterisierung von Laserpulsen mit der FROG-Methode . . . . .	55
<b>4</b>	<b>Ergebnisse</b>	<b>63</b>
4.1	Spektrum in Argon bei verschiedenen Drücken . . . . .	63

---

4.2	Messungen mit Luft . . . . .	66
4.3	Spektrum und FROG bei verschiedenen Argon-Drücken . . . . .	69
4.4	Spektrum und FROG bei Verschiebung der Linsen. . . . .	71
4.5	FROG-Spur und Phasenverlauf eines Pulses . . . . .	74
<b>5</b>	<b>Diskussion</b>	<b>77</b>
	<b>Abbildungsverzeichnis</b>	<b>81</b>
	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>85</b>

---

# Kapitel 1

## Einleitung

Wäre die Natur nicht schön,  
wäre sie nicht wert, ergründet zu  
werden, und wäre sie nicht wert,  
ergründet zu werden, wäre das  
Leben nicht wert, gelebt zu  
werden.

---

(Henri Poincaré)

### *Die Entdeckung des Mikrokosmos*

In der griechischen Antike um 400 v.Chr. entstanden erste konkrete Vorstellungen über die innere Struktur der Materie. Einige Gelehrte dieser Epoche, an erster Stelle der Naturphilosoph Demokrit, vertraten die Ansicht, dass alle Naturkörper aus unendlich kleinen, unteilbaren Objekten ("Atome" genannt) bestünden, deren Interaktion untereinander bestimmend für die Eigenschaften dieser Körper seien. Diese Meinung wurde jedoch von vielen anderen großen Denkern wie Aristoteles nicht geteilt und auch in den folgenden Jahrhunderten aus philosophischen oder religiösen Gründen größtenteils abgelehnt bzw. verdrängt. Die Rehabilitierung der Atomhypothese begann erst mehr als zwei Jahrtausende später mit Versuchen einiger Chemiker wie J. Dalton, die Hinweise auf das Vorhandensein kleinster, nicht zerlegbarer Teilchen lieferten. Spätestens mit dem Aufkommen der kinetischen Gastheorie im 19. Jahrhundert war der Erfolg der Theorie dann nicht mehr aufzuhalten. Ein tatsächlicher Beweis für die Existenz der Atome blieb allerdings schwierig, da solche Objekte nicht unmittelbar sichtbar waren. Nichtsdestotrotz war es möglich, aus verschiedensten Experimenten auf die Eigenschaften von Atomen zu schließen. So deuteten beispielsweise Gasentladungsexperimente auf das Vorhandensein elektrischer Ladung hin, deren Wert J.J. Thomson 1899 ermittelte. Den grundsätzlichen Aufbau eines Atoms erkannte Rutherford 1911 schließlich mit seinen Streuexperimenten [1].

### *Jenseits der Vorstellungskraft*

Zur selben Zeit hatten sich außerdem Befunde ergeben, die nicht mit klassischen Vorstellungen und Modellen der Mechanik und Elektrodynamik erklärbar waren. Eingeläutet von Männern wie Bohr und Schrödinger erfolgte im Rahmen der neuen Quantenphysik bzw. Quantenmechanik ein regelrechter



Paradigmenwechsel. Man entdeckte eine neue Welt, in der Materieteilchen sich wie Wellen(pakete) verhalten konnten und ihr Aufenthaltsort von Natur aus unscharf war. Die zeitliche Entwicklung eines physikalischen Systems stellte sich als nur noch eingeschränkt berechenbar heraus. Es wurde die Einsicht gewonnen, dass die Gesetze auf dieser mikroskopischen Ebene zum Teil mit gewohnten Denkmustern und Anschauungen unvereinbar waren bzw. weiterhin sind. Schärfer formuliert stellt sogar die bildliche Vorstellung selbst und die Bewegung auf dem "trägerischen Sand des gesunden Menschenverstandes und der Intuition"<sup>1</sup> ein Problem dar. Um es mit Heisenbergs Worten zu sagen: "Die Quantentheorie ist so ein wunderbares Beispiel dafür, dass man einen Sachverhalt in völliger Klarheit verstanden haben kann und gleichzeitig doch weiß, dass man nur in Bildern und Gleichnissen von ihm reden kann." Man muss in gewisser Hinsicht eingestehen, dass die Quantenmechanik widerspruchsfrei am ehesten mathematisch in den Griff zu bekommen ist. In dieser Hinsicht stellt die in den 1940er Jahren entwickelte Quantenelektrodynamik den vollkommenen Triumph dar. Aber so präzise und einwandfrei die Theorie auch war und bis heute ist, so bleibt ein Widerspruch zum sogenannten gesunden Menschenverstand im Regelwerk der Quantenwelt bis heute bestehen.

### *Die Natur des Lichts und seine Interaktion mit Materie*

Noch vor Entdeckung des Wellencharakters von Materie gelangte man zu der Erkenntnis, dass auf der anderen Seite Licht bzw. elektromagnetische Strahlung im Allgemeinen neben den bekannten Welleneigenschaften auch Charakterzüge von Teilchen besaß. Das wohl wichtigste Indiz hierfür war wohl der photoelektrische Effekt, den zuerst Hallwachs, Lenard u.a. Ende des 19. Jahrhunderts systematisch untersuchten. Bei Bestrahlung einer Metallplatte mit ultraviolettem und normalem Licht zeigt sich, dass nur das UV in der Lage ist, Elektronen aus dem Metall herauszulösen (Photoionisation). Geht man davon aus, dass das Licht eine Welle ist, so sollte eine Intensitätserhöhung auch im sichtbaren Bereich den Elektronen genügend Energie zuführen, was sich aber eben als falsch herausstellte. Der erste große Schritt in theoretischer Hinsicht war die korrekte Berechnung der spektralen Verteilung von Schwarzkörperstrahlung durch Max Planck. Als eine Art "deus ex machina" hatte dieser rein formal eine Quantisierung der Energieabgabe des Körpers angenommen und das sogenannte Wirkungsquantum  $h$  eingeführt, jedoch ohne dies weitergehend zu interpretieren. Der Erfolg von Planck sowie die Beobachtung des Photoeffekts veranlasste dann schließlich Einstein zur Aufstellung seiner Lichtquantenhypothese [3]. Das Licht sollte demnach aus Photonen genannten Teilchen mit einer nur von der Frequenz  $\nu$  abhängigen Energie  $E = h \cdot \nu$  bestehen, während die Zahl dieser Photonen proportional zur Strahlungsintensität sei. Im Falle des Photoeffekts bestimmt diese Zahl somit die Photoionisationsrate.

### *Photonen arbeiten zusammen*

Einsteins Hypothese über die Teilcheneigenschaften des Lichts lieferte die Erklärung für den Photoeffekt und schien die Erkenntnis zu zementieren, dass allein die Energie des einzelnen Photons für das Herauslösen eines Elektrons relevant sei, nicht aber die Intensität der Strahlung. Aber bereits 1931 brachte Maria Göppert-Mayer in "Über Elementarakte mit zwei Quantensprüngen" [4] die Möglichkeit einer Anregung durch zwei Photonen, also eines gemeinsamen Wechselwirkens zweier Strahlungs-

---

<sup>1</sup>Michio Kaku in "Hyperspace"[2]

---

quanten mit einem einzigen Elektron, ins Spiel. Die Energien der beiden Photonen sollten in diesem Fall in ihrer Summe für die Anregung bzw. eine Ionisation sorgen. Noch allerdings fehlten zu dieser Zeit die Instrumente zum Nachweis eines solchen Prozesses, da der Wirkungsquerschnitt hierfür klein ist und die notwendige, hochintensive Strahlungsquelle nicht verfügbar war. Durch die Entwicklung von Quellen starker Radioemissionen war es dann in den 50er Jahren möglich, Multiphotonen-Übergänge (d.h. nicht nur die prognostizierten Zwei-Photonen-Übergänge) zu beobachten - aufgrund der geringen Frequenz jedoch nur solche zwischen aufgespaltenen Energielevels im Rahmen des Zeeman-Effekts. Seit der Erfindung des Lasers 1960 war dann auch eine intensive Quelle für den sichtbaren, höherfrequenten Bereich vorhanden. Innerhalb weniger Jahre ließen sich hiermit zunächst atomare Übergänge mit zwei Photonen, 1965 dann schließlich eine Multiphotonen-Ionisation (MPI) beobachten [5]. Gütig blieb weiterhin, dass die Intensität ein Ausdruck für die Anzahldichte der Photonen und somit bestimmend für die Ionisationsrate ist. Nun war es aber offensichtlich nicht mehr nötig, das das einzelne Photon ausreichend Energie für die Ionisation besitzt; je intensiver das Strahlungsfeld umso eher können mehrere Photonen "gleichzeitig" absorbiert werden, um sozusagen in Kooperation die Energie für eine Ionisation aufzubringen.

### *Die Kompression von Licht*

Zur Erzeugung immer höherer Intensitäten war ein Übergang von kontinuierlichen zu gepulsten Lasern vonnöten. Es musste die größtmögliche Menge Energie in eine möglichst kurze Zeitperiode gepackt werden. Dies lässt sich grundsätzlich dadurch erreichen, dass man gezielt die einzelnen Moden (Lichtwellenzüge verschiedener Frequenzen) des Lasers konstruktiv bzw. destruktiv überlagert. Dabei gehen die höheren Intensitäten im Grunde einher mit der Erreichung immer kürzerer Pulsdauern. Bereits 1965 kamen Mocker und Collins [6] durch Modulation der Resonatorverluste (Q-switching) in einem Rubin-Laser auf Werte um  $10^{-8}$  s. Innerhalb von gut 20 Jahren wurden in der Puls laser-Technologie massive Fortschritte erzielt, sodass bis Anfang der 80er Jahre durch die mode-locking-Technik (Kopplung der Lasermoden) bereits Lichtpulse mit Längen unter  $10^{-14}$  s und Intensitäten im Bereich von  $10^{14} \frac{W}{cm^2}$  erzeugt werden konnten [7]. Schon dies sind, in elektrische Feldstärken übersetzt, Verhältnisse, vergleichbar mit denen innerhalb eines Atoms. Mittlerweile ist man in der Gegend einiger Hundert Attosekunden ( $10^{-18}$  s) angelangt und Intensitäten von mehr als  $10^{20} \frac{W}{cm^2}$  sind möglich.

### *Weit kürzer als ein Augenblick*

Die Erzeugung immer kürzerer und intensiverer Laserpulse war stets getrieben vom Wunsch, mehr über die schnellsten Vorgänge in der Natur zu erfahren [7]. Mit Pulsen dieser zuvor erwähnten, unglaublich kurzen Dauer ist es nun möglich, einerseits wegen der zugleich extrem hohen Intensität die Multiphotonen-Ionisation weitergehend zu studieren und neuen Prozessen auf die Spur zu kommen. Auf der anderen Seite erreichen wir mit dem Vordringen in den Femtosekunden-Bereich ( $10^{-15}$  s = 1 fs) die Zeitskala, auf der chemische Reaktionen ablaufen. Femtosekunden-Laserpulse erlauben somit im Grunde das Studieren dieser Reaktionen in Zeitlupe. Speziell das dynamische Verhalten der Atome in Molekülen bei der Entstehung oder Zerstörung chemischer Bindungen ist hierbei von Bedeutung. Verbunden ist damit die Frage, warum bestimmte Reaktionen stattfinden, andere jedoch nicht. Ein realistischer Traum für die Zukunft wäre die Möglichkeit der Manipulation einer chemischen Reaktion mithilfe der Laserpulse, sodass sich spezielle Reaktionspfade ansprechen lassen, die mit konventio-

nellen Mitteln unerreichbar sind [8]. Femtosekundenpulse können als Hochgeschwindigkeitskamera zur Erfassung der Dynamik einer chemischen Reaktion oder von Molekülbewegungen an sich durch Zerlegung in Einzelbilder eingesetzt werden.

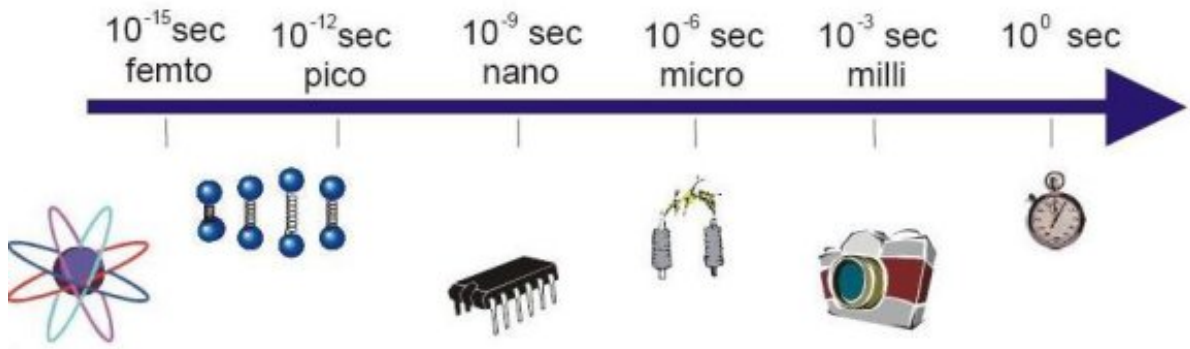


Abbildung 1.1: Zeitskala kurzer physikalischer Vorgänge (aus [9])

Als historisches Vorbild dient u.a. Eadweard Muybridge mit seinen Studien der Bewegungen von Menschen und Tieren, wobei der zeitliche Abstand zwischen seinen Bildern im Bereich einer hundertstel Sekunde lag <sup>2</sup>.

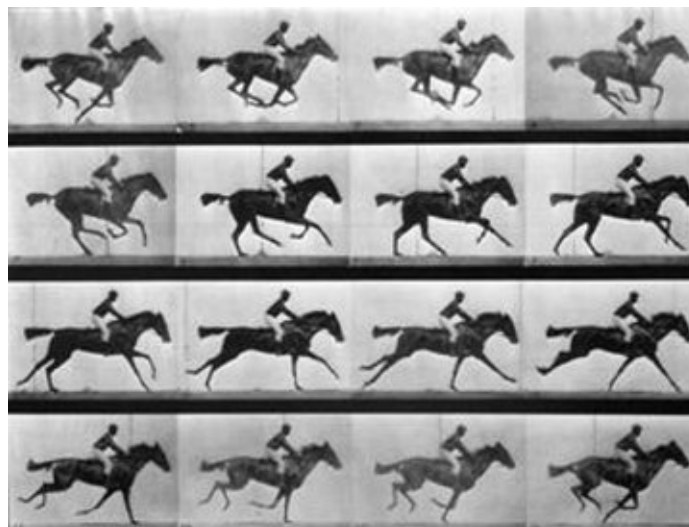


Abbildung 1.2: Muybridges Bewegungsstudie des Pferdegallops ("Le galop de Daisy") in "La Nature" 1878

Die üblichste Methode für diese Art der Fotografie ist die sog. "pump-probe"-Technik. Ein erster Laserpuls leitet eine Reaktion ein bzw. versetzt Moleküle in einen bestimmten Zustand ("pump"), ein zweiter

<sup>2</sup>1872 gelang es Muybridge mit zwölf Fotokameras, die er hintereinander auslöste, den Bewegungsablauf eines Pferdes aufzuzeichnen. Mit Hilfe des von ihm entwickelten Zoopraxiskops projizierte er diese Serie von Bildern nacheinander so an eine Wand, dass die Bewegungssequenz sichtbar wurde - nebenbei der wohl erste wichtige Schritt zur Entwicklung des Kinos.

---

Puls folgt in sehr kurzem Zeitabstand (natürlich um etliche Größenordnungen kleiner als in Muybridges Fall) und blitzt sozusagen das Ergebnis ("probe"). Dies geschieht (aufgrund der hohen Intensität des Laserpulses) durch die Multiphotonen-Ionisation der Moleküle und Analyse der entstehenden Fragmente. Bei Variation des Zeitabstandes erhält man so eine Bildserie des Verlaufs der Antwort des Systems auf den pump-Puls.

#### *Auf dem Weg zur "Elektronenkamera"*

Trotz der unvorstellbar kurzen Zeit, die ein Laserpuls von beispielsweise 10 Femtosekunden andauert, so sind wir hierbei immer noch mehrere Größenordnungen von der Zeitskala entfernt, auf der die letztlich entscheidenden Prozesse innerhalb der Atome, also die Bewegungen der Elektronen, ablaufen. Einfach ausgedrückt sind für die Verfolgung immer schnellerer Vorgänge auch immer geringere "Belichtungszeiten" notwendig. Um also das Verhalten von Elektronen direkt beobachten zu können, muss die Zeitauflösung der Instrumente nochmal erheblich gesteigert werden, nämlich auf etwa 10 oder zumindest 100 Attosekunden. Für ein pump-probe-Experiment bedeutet dies primär, dass eine weitere Verkürzung der Pulse außerhalb des eigentlichen Lasersystems vonnöten ist (externe Pulskompression).

In diesem Sinne war es denn auch Gegenstand dieser Diplomarbeit, zwei wesentliche Grundlagen für pump-probe-Untersuchungen mit möglichst hoher Zeitauflösung zu schaffen:

- Ein Aufbau zur Aufspaltung und zeitlichen Verzögerung ankommender Laserpulse (relativ zueinander). Die Aufspaltung geschieht mithilfe von Strahlteilern in einem Interferometer vom Mach-Zehnder-Typ. Für einen Arm des Interferometers werden die entsprechenden Spiegel auf einem motorisierten Verschiebetisch platziert, wodurch eine einstellbare Zeitverzögerung ermöglicht wird.
- Eine Anordnung zur zeitlichen Kompression der Pulse. Dazu werden diese (mit variabler Brennweite) in eine mit Argon gefüllte Röhre fokussiert. Bei ausreichender Intensität entsteht in der Röhre ein sogenanntes Filament, welches näherungsweise die Charakteristika eines räumlichen *Solitons* aufweist. Die wesentliche Eigenschaft des Filaments ist, dass sich die Selbstfokussierung durch den Kerr-Effekt und die Defokussierung infolge der Plasmabildung gegenseitig kompensieren - die räumliche Pulsbreite bleibt dadurch über eine lange Strecke erhalten. In Verbindung mit diversen anderen nichtlinearen Effekten führt dieser Vorgang zu einer spektralen Verbreiterung und ermöglicht letztlich die angestrebte Zeitkompression der Laserpulse.

#### **Bemerkung :**

Ursprünglich sollte im Rahmen dieser Diplomarbeit ein pump-probe-Experiment an Molekülen auch tatsächlich durchgeführt werden (Beschreibung in Kapitel 3), damals noch ohne die zusätzliche Pulskompression. Zwar stand eine entsprechende Vakuumkammer wie auch die Elektronik für die Datenaufnahme aufgebaut zur Verfügung. Unglücklicherweise bereitete das Lasersystem jedoch wiederholt Probleme, die den Start der Messungen über etliche Monate hinweg verzögerten. Da anschließend zudem eine zeitaufwändige Auswertung und Interpretation der Daten notwendig gewesen wäre, wurde stattdessen die Kompression der Pulse als "Ersatzexperiment" in Angriff genommen. Dennoch bezieht sich ein Teil der Texte noch speziell auf dieses Vorhaben und wurde bereits Monate vor Aufgabe dessen verfasst (insbesondere die Kapitel 2.2 und 2.3 der theoretischen Grundlagen). Angesichts des

entsprechenden Zeitaufwands, der nicht vergeblich gewesen sein sollte, sind diese "Überbleibsel" des pump-probe-Experimentes daher hier noch enthalten.

# Kapitel 2

## Theoretische Grundlagen

Die theoretischen Physiker sind die Kollegen, die zu Hause in Madrid blieben und Kolumbus voraussagten, dass er in Indien landen wird.

---

*(Victor Weisskopf)*

### 2.1 Quantensysteme in starken elektromagnetischen Strahlungsfeldern

Die Photoionisation eines Quantensystems (Atom/Molekül/Ion) kann auch dann stattfinden, wenn die Energie  $E = h \cdot \nu$  der einfallenden Photonen kleiner als die Bindungsenergie  $E_i$  des äußersten Elektrons ist - man spricht von einer nichtlinearen Ionisation. In diesem Falle sind  $N$  Photonen an einer einzelnen Ionisation beteiligt und die Bedingung  $N \cdot h \cdot \nu > E_i$  muss erfüllt sein. Gemäß der Unschärferelation zwischen Energie und Zeit ist ein durch ein Photon angeregter Elektronen-Übergang innerhalb eines Quantensystems mit einer gewissen Energieunschärfe  $\Delta E$  behaftet und das Elektron verbleibt für eine Zeit  $\Delta t$  im Endzustand  $|f\rangle$ . Da dieser Zustand aber nur innerhalb der Grenzen der Unschärferelation angenommen werden kann, muss er eher als virtueller Zwischenzustand bezeichnet werden. Je nach Photonendichte kann mit mehr oder weniger großer Wahrscheinlichkeit bei jedem Zwischenzustand also innerhalb von  $\Delta t$  ein weiteres Photon absorbiert werden.

#### 2.1.1 Keldysh-Theorie

Ein solcher Ionisationsprozess wird von drei wesentlichen Parametern bestimmt: der Photonenfrequenz  $\nu$  bzw.  $\omega$ , der Intensität  $I$  der Strahlung (bzw. der entsprechenden elektrischen Feldstärke  $E$ ) und der Bindungsenergie  $E_i$  des Elektrons. Dazu wurde zuerst 1965 von L.Keldysh eine Theorie aufgestellt [10]. Diese basierte auf folgenden Annahmen: ein kurzreichweitiges Potential, die Photonenener-

gie solle wesentlich kleiner als die Ionisierungsenergie  $I_P$  sein und die elektrische Feldstärke deutlich unter der atomaren Feldstärke <sup>1</sup> liegen. Die entscheidende Größe in Keldyshs Theorie ist der "Adiabatie-Parameter"  $\gamma$  (auch: Keldysh-Parameter), der bestimmend für die Ionisationswahrscheinlichkeit  $w$  ist:

$$\gamma = \frac{\omega\sqrt{2mI_P}}{eE}.$$

Dabei bedeutet  $e$  die Elementarladung und  $m_e$  die Masse des Elektrons.

	Xe	Kr	Ar	Ne	O <sub>2</sub>	N <sub>2</sub>
I=10 <sup>14</sup> W/cm <sup>2</sup> , λ=800 nm	1,008	1,083	1,149	1,344	1,004	1,143
I=10 <sup>15</sup> W/cm <sup>2</sup> , λ=800 nm	0,319	0,343	0,363	0,425	0,318	0,361
I=10 <sup>14</sup> W/cm <sup>2</sup> , λ=400 nm	2,017	2,167	2,299	2,689	2,008	2,286
I=10 <sup>15</sup> W/cm <sup>2</sup> , λ=400 nm	0,638	0,685	0,727	0,85	0,635	0,723

**Tabelle 2.1:** Einige Beispiele für Werte des  $\gamma$ -Parameters bei verschiedenen Wellenlängen und Intensitäten.

Mittels  $\gamma$  lassen sich zwei Fälle unterscheiden:

Sofern  $\gamma^2$  wesentlich größer als 1 ist, ergibt sich für die Ionisationswahrscheinlichkeit (im atomaren Einheitensystem):

$$w = \sigma^{(N)} \left( \frac{cE^2}{8\pi\omega} \right)^N = \sigma^{(N)} \frac{I^N}{\omega}.$$

Dabei ist  $c$  wie üblich die Lichtgeschwindigkeit,  $\sigma^{(N)}$  ist der Multiphotonen-Wirkungsquerschnitt  $N$ -ter Ordnung. Letzterer ist abhängig von der atomaren Struktur, der Frequenz  $\omega$  und der Polarisation der Strahlung.

Ist  $\gamma^2$  deutlich kleiner als 1, so erhält man:

$$w \propto \exp\left(\frac{-2(2I_P)^{\frac{3}{2}}}{3E}\right).$$

Dieser Fall entspricht nicht mehr der eigentlichen Multiphotonen-Ionisation sondern einer Tunnelionisation in einem alternierenden elektrischen Feld (dazu später mehr). Der wesentliche qualitative Unterschied zwischen beiden Fällen ist die Frequenzabhängigkeit der Multiphotonen-Ionisation, die bei der Tunnelionisation nicht vorhanden ist. Für letztere ist dieses Verhalten nur dann gegeben, wenn die Oszillationsperiode des externen Feldes deutlich die Zeit übersteigt, die ein Elektron für das Tunneln benötigt - andernfalls ist nicht ausreichend Zeit zum Durchtunneln der Potentialbarriere innerhalb eines Zyklus vorhanden. Der Parameter  $\gamma$  ist letztlich das Verhältnis von Tunnelzeit zur Dauer eines Laserzyklus.

Prinzipiell sollte man festhalten, dass die zwei Fälle im Grunde Beschreibungen des gleichen Vorgangs sind. Je nach Beziehung von Frequenz, Ionisationspotential und Intensität zueinander ist dann das eine oder das andere Modell besser geeignet.

Das Hauptproblem von Keldyshs Theorie lag in der Beschränkung auf Potentiale kurzer Reichweite,

<sup>1</sup>Diese beträgt beispielsweise im Wasserstoffatom im Abstand von einem Bohr-Radius ca.  $5 \cdot 10^9 \frac{V}{cm}$

was die Betrachtung der nichtlinearen Ionisation von neutralen Atomen oder Molekülen ausschloss. Eine allgemeine analytische Lösung für beide oben genannten Fälle von nichtlinearer Ionisation blieb sehr schwierig, sodass diese fortan getrennt betrachtet wurden [11]. Der wesentliche Nutzen verblieb in der Möglichkeit, durch den Parameter  $\gamma$  die Bereiche, wo Multiphotonen-Ionisation oder aber eben die Tunnelionisation dominiert, zu unterscheiden.

### 2.1.2 AC-Stark-Verschiebung

Betrachten wir ein Quantensystem, das durchsetzt ist von einem externen elektromagnetischen Feld vom Betrag  $E$  und mit der Frequenz  $\omega$ : Nach dem Floquet-Theorem entsteht in dieser Situation ein Spektrum von Quasi-Energiezuständen  $E_i(E) \pm N \cdot \hbar\omega$ ; dabei ist  $E_i(E)$  der Energieeigenwert des Gesamtsystems "Quantensystem + Feld". Solange das Feld z.B. ein Atom durchdringt, existiert analog zum bekannten Stark-Effekt (im Falle statischer Felder) eine sog. AC-Stark-Verschiebung

$$\delta E_i = E_i(E) - E_i.$$

Diese Verschiebung eines Energielevels kann bei starken elektrischen Wechselfeldern respektive hohen Intensitäten in der Größenordnung des Energieniveaus selbst (im ungestörten Zustand) oder sogar darüber liegen [11]. Im Falle der am stärksten gebundenen Elektronen ist wegen des stärkeren Feldes des Atomkerns nur eine leichte Änderung möglich - in Gegenwart beispielsweise eines Laser-Feldes oszilliert der Zustand nur schwach. Rydberg-Zustände hingegen sind nur schwach gebunden, ihre Verschiebung entspricht näherungsweise der sog. ponderomotiven Energie  $U_P$ . Hierbei handelt es sich um die (über einen Zyklus) gemittelte kinetische Energie eines freien Elektrons in einem Laser-Feld [12]:

$$U_P = \left\langle \frac{e^2 E^2}{4m_e \omega^2} \right\rangle.$$

### 2.1.3 Multiphotonen-Ionisation

Bei der Multiphotonen-Ionisation handelt es sich um einen Mehrphotonenübergang eines Elektrons von einem Anfangszustand über mehrere virtuelle Zwischenzustände ins Kontinuum. Experimente zeigten eine gute Übereinstimmung mit der Störungstheorie niedrigster Ordnung für die N-Photonen-Ionisationsrate  $\Gamma^{(N)}$  (bei Intensitäten unterhalb von etwa  $10^{13} \frac{W}{cm^2}$ ):

$$\Gamma^{(N)} = \sigma^{(N)} \cdot I^N.$$

Dieser Zusammenhang lässt sich schon aus Keldyshs Theorie erschließen: Seine Formel für die Ionisationswahrscheinlichkeit im MPI-Fall multipliziert mit der Frequenz  $\omega$  ergibt obige Formel für die Ionisationsrate.

Die hochgradig nichtlineare<sup>2</sup> Abhängigkeit konnte bis zu einem Wert von  $N=22$  nachgewiesen werden

---

<sup>2</sup>Tatsächlich ist hinsichtlich des Grades der Nichtlinearität in der Physik kaum etwas Vergleichbares bekannt.



[13].

Es existieren zwei Typen der Multiphotonen-Ionisation:

- direkt und nicht-resonant
- indirekt und resonant.

Bei der ersten Variante tritt keine Resonanz zwischen der Energie von  $N$  Photonen und der Energie  $\Delta E$  erlaubter elektronischer Übergänge im Atom auf. Die Bedingung hierfür ist, dass der Differenzbetrag  $|\Delta E - N h \nu|$  deutlich größer als die natürliche Breite des Zustands ist. Der Prozess ist somit im wesentlichen beschränkt auf deutlich geringere Feldstärken als die atomare Feldstärke, die Störungstheorie ist in dieser Situation noch anwendbar. Bei höheren Feldstärken stehen andere Prozesse wie die Mehrfachionisation, die Above-Threshold-Ionization oder die AC-Stark-Verschiebung in Konkurrenz, auf die an anderer Stelle eingegangen wird. Die bereits diskutierte AC-Stark-Verschiebung stellt speziell im optischen Bereich ein Problem dar. Die Verschiebung kann Werte im Bereich der Energieunterschiede zwischen Nachbarzuständen erreichen. In Gegenwart eines kurzen Laserpulses ändert sie sich zudem dynamisch wegen der inhomogenen Intensitätsverteilung des Pulses, eine Unterscheidung zwischen dem nicht-resonanten und dem resonanten Fall ist dann kaum möglich. Letzterer schließt die Anwendbarkeit der Störungstheorie aus. Resonante Anregungen der ursprünglichen Bindungszustände führen zu einer Entvölkerung dieser Zustände, was die Grundannahme der Störungstheorie eindeutig verletzt. Die Ionisationsrate ist aufgrund der Zwischen-Resonanzen wesentlich größer als im Fall der direkten Multiphotonen-Ionisation.

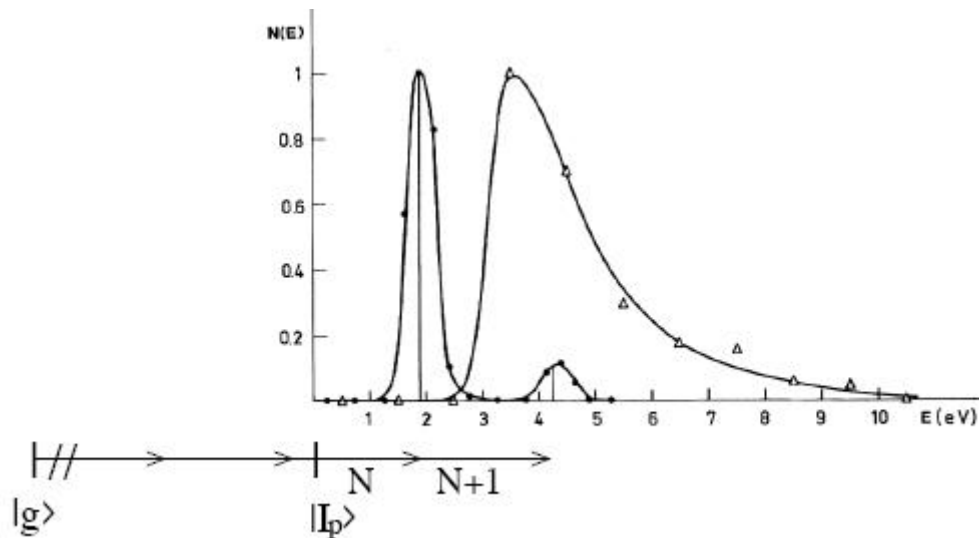
Rechnungen und Experimente zeigen, dass 2-3 Größenordnungen unterhalb atomarer Feldstärken die direkte Ionisation der dominante Prozess ist, was natürlich aber auch abhängig von der Atomsorte und der Strahlungsfrequenz ist [11].

### 2.1.4 Above-Threshold-Ionization

Für den Fall der Multiphotonen-Ionisation ( $\gamma^2 \gg 1$ ) existiert eine Besonderheit, die zunächst vielleicht etwas verwundert. Bei einer sog. Above-Threshold-Ionization (ATI) werden mehr Photonen absorbiert, als für eine Ionisation nötig sind (threshold = minimale Photonenzahl für Ionisation). Verwunderung dürfte beim Gedanken an die Tatsache entstehen, dass freie Elektronen ja keine Photonen absorbieren können. Nachdem ausreichend Photonen für eine Ionisation absorbiert wurden, ist das Elektron frei und kann dennoch weiter Elektronen absorbieren!? Man geht davon aus, dass das Elektron eben nicht wirklich frei ist sondern im weiteren Verlauf des (extrem schnellen) Absorptionsprozesses noch dem Einfluss des Kernpotentials unterliegt.

Agostini *et al* [15] entdeckten 1979 eine Above-Threshold-Ionization zum ersten Mal im Energiespektrum der Elektronen bei der Multiphotonen-Ionisation von Xenon-Atomen. Sie fanden neben einem einer 6-Photonen-Ionisation entsprechenden Maximum ein weiteres bei einer Energie, die auf die Beteiligung von 7 Photonen hinwies. Dieses zweite Maximum wurde interpretiert als Absorption eines zusätzlichen Photons oberhalb der Ionisationsschwelle (threshold).

In der Folge fand man ATI-Elektronen bei verschiedensten Atomen und Molekülen und unterschiedlichsten Frequenzen. Typischerweise sind die notwendigen Intensitäten im Bereich von etwa  $10^{12}$  bis



**Abbildung 2.1:** Entdeckung der ATI: Energiespektrum emittierter Elektronen bei  $8 \cdot 10^{12} \frac{W}{cm^2}$  (Kreise). Die Energiedifferenz zwischen beiden Peaks entspricht der Energie eines der eingestrahnten Photonen (2.34 eV). Die Dreiecke gehören zu einer Vergleichsmessung mit anderer Photonenenergie und Intensität (aus [14]).

$10^{14} \frac{W}{cm^2}$ . Als zusätzliche Erweiterung zur ursprünglichen Formel von Einstein lassen sich die Elektronenenergien  $E_{kin}$  nun folgendermaßen ausdrücken:

$$E_{kin} = (N + A)h\nu - I_p.$$

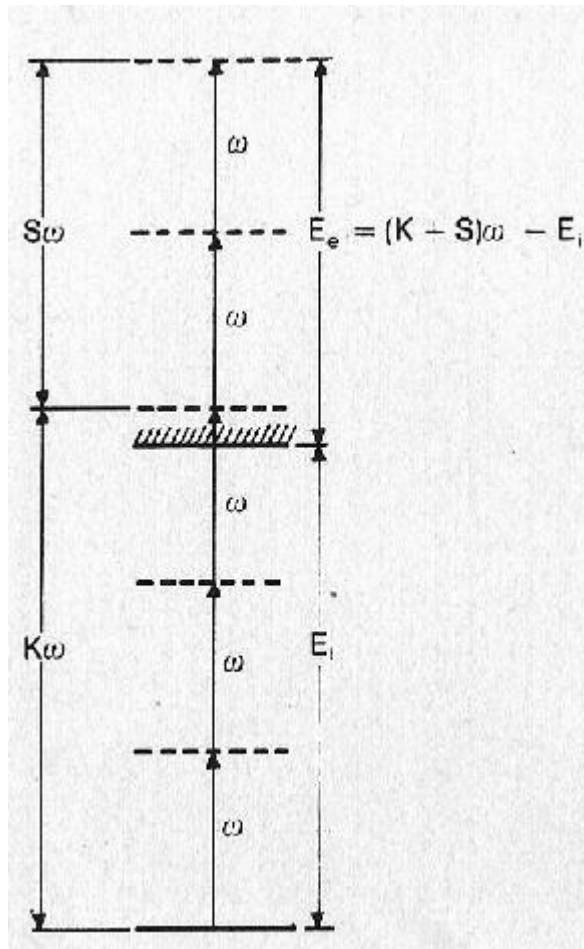
Die Zahl A der zusätzlichen Photonen ist dabei sehr variabel. Das Spektrum der ATI-Elektronen besteht im wesentlichen aus einer Reihe von Peaks im Abstand von jeweils der Energie eines Photons.

Die Höhe der Peaks (d.h. die Ionisationsrate) ändert sich mit der Intensität. Die wichtigste Beobachtung ist dabei, dass sich mit zunehmender Intensität der höchste Peak in Richtung niedrigerer Energien verschiebt. Im Kontinuum müssen die Elektronen nämlich zusätzlich die bereits angesprochene ponderomotive Energie  $U_p$  aufnehmen, was im Grunde einer Erhöhung der Ionisationsschwelle entspricht. Äquivalent dazu kann man auch von einer AC-Stark-Verschiebung der Schwelle um den Wert  $U_p$  sprechen.  $U_p$  nimmt mit der Intensität zu und kann Werte oberhalb der Photonenenergie erreichen. In diesem Fall werden ATI-Peaks niedrigerer Energien unterdrückt; die Peaks werden rotverschoben, da mehr Energie für die Überwindung der Ionisationsschwelle benötigt wird [14]. Üblicherweise verschwinden die Peaks nicht vollkommen, da beim Einsatz von Laserpulsen diese nicht überall maximale Intensität erreichen [16].

### 2.1.5 Tunnelionisation

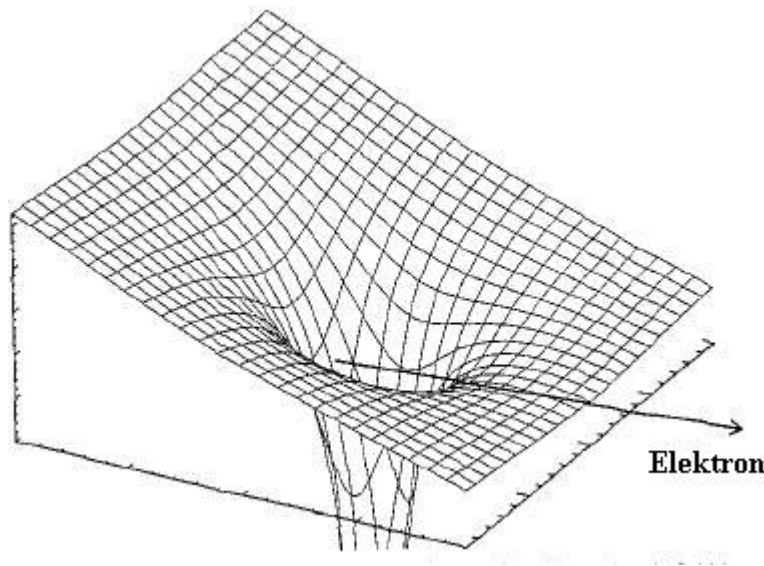
#### *Qualitative Beschreibung :*

Eine der wesentlichsten Eigenarten der Quantenmechanik im Vergleich zur klassischen Mechanik ist



**Abbildung 2.2:** Schema der ATI: hier ist  $K$  die minimal nötige Photonenzahl,  $S$  die Zahl der zusätzlichen ("above threshold") Photonen und  $E_i$  die Bindungsenergie (aus [11]).

ohne Zweifel das wellenartige Verhalten der Materie und damit verbunden die Unschärferelation zwischen Aufenthaltsort und Impuls. Die einem Teilchen zugeschriebene Wellenfunktion  $\Psi$  (genauer gesagt  $|\Psi|^2$ ) ermöglicht eine Aussage über die Aufenthaltswahrscheinlichkeit an einem bestimmten Ort. Die Unbestimmtheit hat eine wichtige Konsequenz für von einem Potentialwall "blockierte" Teilchen, die also nicht genügend Energie besitzen, um einen solchen Wall zu überwinden. Das Phänomen des Tunneleffekts bedeutet, dass diese Teilchen auch jenseits der (energetischen) Barriere eine gewisse Aufenthaltswahrscheinlichkeit besitzen bzw. diese durchdringen können. Für den von uns diskutierten MPI-Prozess ergibt sich somit die Chance, dass ein gebundenes Teilchen diesen Zustand verlassen kann, obwohl es eigentlich nicht ausreichend Energie für die Ionisation besitzt. Eine sog. Tunnelionisation ist nämlich in unserem Fall dadurch möglich, dass das starke externe elektrische Feld das Feld des Kerns überlagert bzw. das äußere Potential (z.B. eines Lasers) das Kernpotential verzerrt. Die auf einer Seite entstehende Barriere kann dann von einem gebundenen Elektron mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit "durchtunnelt" werden.



**Abbildung 2.3:** Das Potential eines Wasserstoffatoms bekommt in einem (statischen) elektrischen Feld einen Sattelpunkt, durch den ein gebundenes Elektron tunnelt kann (aus [17]).

### **Experimenteller Hinweis :**

1985 wiesen Chin *et al* [18] zum ersten Mal eine Tunnelionisation bei Xenon-Atomen nach. Dabei kam ein  $CO_2$ -Laser bei einer Intensität von knapp  $10^{14} \frac{W}{cm^2}$  zum Einsatz, was einer Feldstärke von gut 1/10 der atomaren Feldstärke entspricht. Zum einen traf bei diesem Experiment für Keldyshs Parameter der Fall  $\gamma^2 \ll 1$  zu, zum anderen ergaben sich bei verschiedenen Laserfrequenzen etwa gleiche Ionisationsraten. Beides deutete also auf den Tunnelionisationsprozess hin. Ein Problem entsteht, wenn die Strahlung im sichtbaren Bereich liegt und zugleich die Laser-Feldstärke etwa die atomare Feldstärke erreicht. In diesem Fall ist der MPI-Bereich kaum frequenzabhängig, was ja nach den bisherigen Ausführungen eigentlich ein Charakteristikum der Tunnelionisation ist. Eine klare Unterscheidung nach Keldyshs Muster ist hier also kaum möglich.

**ADK-Theorie :**

Wie im Zusammenhang mit der Keldysh-Theorie bereits erwähnt, wurden Tunnelionisation und Multiphotonen-Ionisation stets getrennt betrachtet; eine exakte allgemeine Lösung konnte bisher nicht gefunden werden. 1986 veröffentlichten Ammosov, Delone und Krainov ein Modell zur theoretischen Beschreibung der Tunnelionisation in Atomen, die sog. ADK-Theorie [19]. Sie ist das wohl am häufigsten verwendete Modell zur Berechnung der Ionisationsraten. Die Theorie fußt auf der Ionisationsrate von wasserstoffähnlichen Atomen in statischen elektrischen Feldern; auf dieser Basis werden dann Modifikationen für Mehrelektronen-Atome vorgenommen. Ein wesentliches Element ist dabei, dass die Ionisationsrate stark abhängig vom Ionisationspotential des Atoms ist.

Bei der Betrachtung von Molekülen zeigten sich in Experimenten zunächst sehr ähnliche Raten wie für Atome mit etwa gleicher Bindungsenergie, dann jedoch wurden Ausnahmen entdeckt ([20][21] u.a.). So ist beispielsweise die Ionisation bei  $O_2$  gegenüber Xenon-Atomen merklich unterdrückt, wohingegen  $N_2$  mit Argon vergleichbare Ionisationsraten zeigt (bei Verwendung der gleichen Laserpulse!).

	$O_2$	Xe	$N_2$	Ar
Ionisationspotential [eV]	12,03	12,13	15,58	15,76

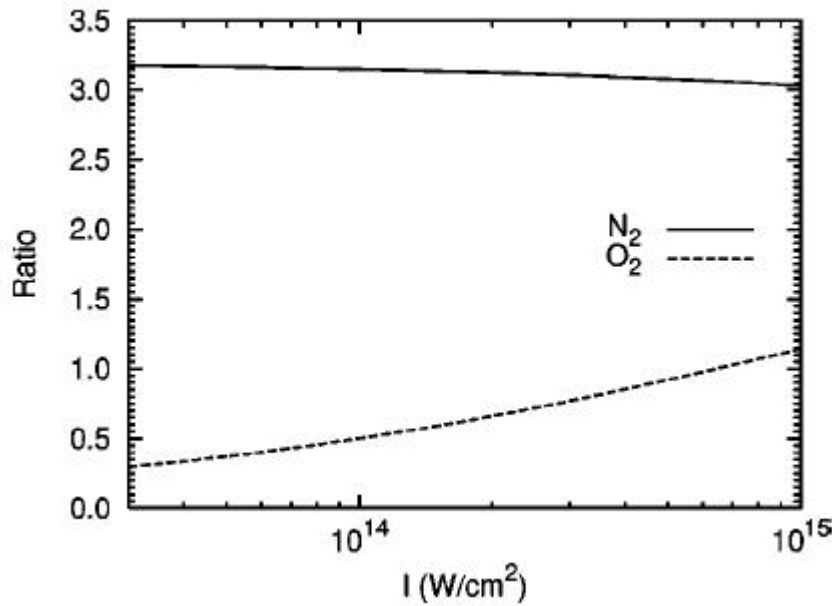
**Tabelle 2.2:** Ionisationspotentiale von Sauerstoff, Xenon, Stickstoff und Argon

Angesichts dieser Diskrepanzen wurde die ADK-Theorie vor wenigen Jahren von Tong *et al* auf diatomare Moleküle erweitert ("MO-ADK"). Das Vorgehen besteht im wesentlichen darin, die Wellenfunktion des äußersten Elektrons im (asymptotischen) Außenbereich zu modifizieren. Dabei wird zum einen der Einfluss unterschiedlicher Vibrationszustände, zum anderen die Asymmetrie der Elektronenwolke (keine Kugelsymmetrie!) berücksichtigt. Letztere beeinflusst insbesondere das Verhalten beim Ausrichten von Molekülen bezüglich der Polarisationsrichtung eines Lasers.

Unberücksichtigt bleibt in der MO-ADK-Theorie die Auswirkung der Elektronen im Sinne von Vielteilchen-Effekten, hier speziell die Rolle der elektronischen Abschirmung. Des weiteren gilt das Modell ausschließlich für das (nicht eindeutig begrenzte) Intensitätsregime, in dem die Tunnelionisation der dominierende Mechanismus ist.

Für diese Diplomarbeit ist insbesondere die Ausrichtung von Moleküle von Interesse: Innerhalb der MO-ADK-Theorie kann die Ionisationsrate von in unterschiedlichen Raumrichtungen orientierten Molekülen auf Basis der Rate von in Laser-Feldrichtung ausgerichteten Molekülen mit Hilfe einer Rotationsmatrix bestimmt werden. Die Ionisationsrate ist dann am größten, wenn die (ursprüngliche) *Wolke der Valenzelektronen* entlang der Feldrichtung ausgerichtet ist. Dies ist nicht unbedingt gleichbedeutend mit der Situation, dass die *Molekülachse* entlang der Feldrichtung liegt. Das gilt insbesondere auch für diatomare Moleküle, wo z.B.  $\pi$ -Elektronenorbitale vorzugsweise nicht parallel zur Verbindungsachse ausgerichtet sind.

Abbildung 2.4 verdeutlicht den Einfluss der unterschiedlichen Orbitale der Valenzelektronen auf die Ionisationsraten von Stickstoff und Sauerstoff (siehe Bildunterschrift). Im Falle von  $N_2$  sitzen die Valenzelektronen in einem  $\sigma$ -Orbital und die Raten sind für ausgerichtete Moleküle deutlich erhöht. Bei



**Abbildung 2.4:** Berechnete Einfach-Ionisationsraten von  $N_2$ - und  $O_2$ -Molekülen, die entlang der Feldrichtung ausgerichtet sind, im Verhältnis zu zufällig ausgerichteten [22].

$O_2$  hingegen sitzen sie in einem  $\pi$ -Orbital und die Ionisationsrate der ausgerichteten Moleküle ist merklich unterdrückt. Die elektronische Wolke ist nicht bevorzugt entlang des Feldes ausgerichtet und das Molekül schwerer zu ionisieren. [22].

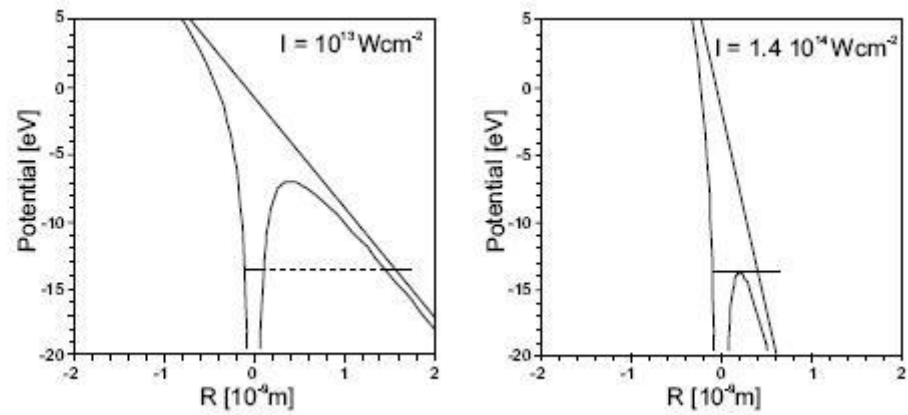
### 2.1.6 Over-The-Barrier-Ionization

Im Falle von externen Feldern unterhalb der atomaren Feldstärke war das Passieren der Potentialbarriere nur über den Tunneleffekt möglich - bei einer schmalen Barriere ließ sich die Tunnelionisation beobachten. Übertrifft aber nun die Strahlungsfeldstärke das atomare Feld, so liegt die Energie des Elektronenzustands oberhalb des Maximums der Potentialbarriere. In dieser Situation ist eine sog. Over-The-Barrier-Ionization (OTBI) möglich: das Elektron ist effektiv nicht mehr gebunden und kann das Atom (klassisch) ungestört verlassen.

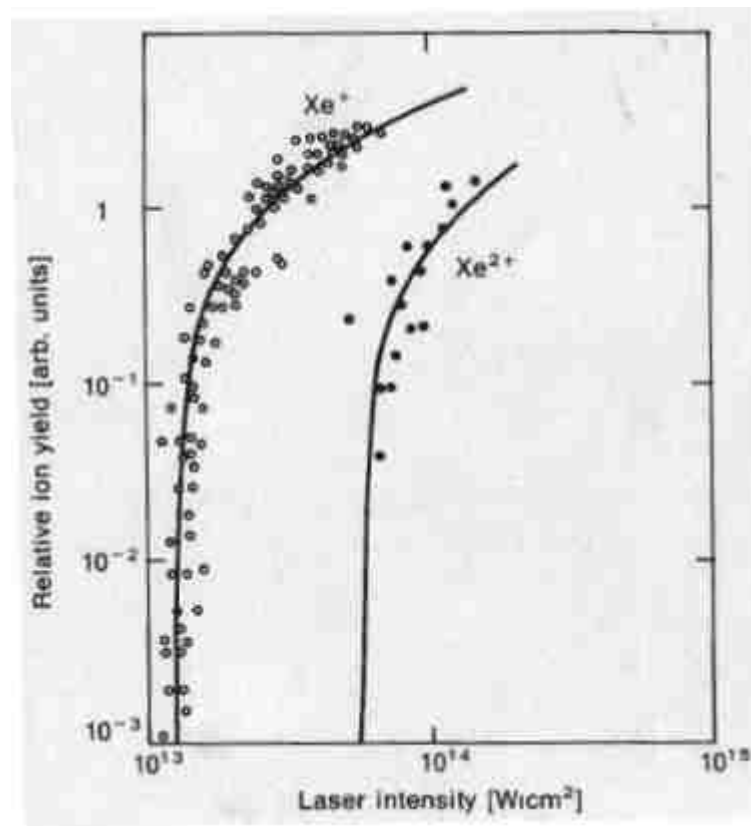
Der kritische Punkt ist erreicht, wenn das Ionisationspotential gleich dem Maximalwert des äußeren Potentials, im Normalfall das Vektorpotential eines Lasers, ist. Die entsprechende kritische Intensität  $I_{OTBI}$  an diesem Punkt lautet [16]:

$$I_{OTBI} = \frac{\pi^2 c \epsilon^3}{2Z^2 e^6} \cdot I_P^4$$

Abbildung 2.6 zeigt, dass mit der Saturation der  $Xe^+$ -Rate die Produktion von  $Xe^{2+}$ -Ionen merklich ansteigt. Die Ionisationswahrscheinlichkeit liegt nun bei 100%, da, wie oben beschrieben, bei dieser



**Abbildung 2.5:** Veranschaulichung der OTBI: Potential im Wasserstoffatom mit einem überlagerten Feld der Intensität  $10^{13} \frac{W}{cm^2}$  (links) und  $1,4 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$  (rechts). Ab der kritischen Intensität  $I_{OTBI}$  unterschreitet die Barriere die potentielle Energie des Elektrons. (aus [23])



**Abbildung 2.6:**  $Xe^{+}$ - und  $Xe^{2+}$ -Ionenrate als Funktion der Laserintensität (aus [24])

Intensität bzw. Feldstärke das Elektron keine effektive Bindung mehr besitzt.

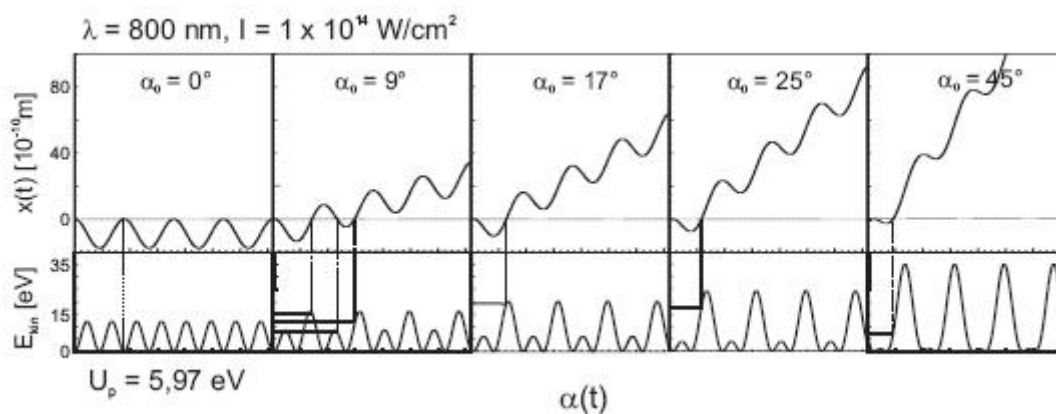
Ein Problem bei der Beobachtung von OTBI-Prozessen kann (wie im Falle der nicht-resonanten Multiphotonen-Ionisation) bei der Verwendung kurzer Pulse auftreten. Da diese keine homogene Intensitätsverteilung besitzen, wird möglicherweise die kritische Intensität nicht überall erreicht, weshalb die Over-The-Barrier-Ionization von der Tunnelionisation überlagert würde.

### 2.1.7 Recollision und Rekombination

Abschließend soll nun noch das Verhalten eines Elektrons nach der Ionisation diskutiert werden. Interessant ist dabei der Zeitraum von mehreren Laserperioden, in dem sich das Elektron in unmittelbarer Nähe zum verbleibenden Ion und noch unter Einfluss des Laserpulses befindet. Sobald es sich von letzterem getrennt hat, entspricht es quantenmechanisch einem sog. Volkov-Zustand. Dieser ist die Lösung der Schrödinger-Gleichung für ein Elektron in einem Laserfeld ohne Berücksichtigung eines atomaren Potentials. Formal beschrieben wird der Zustand als eine ebene Welle plus einer zeitlich oszillierenden Phase (bestimmt durch das vektorielle Potential des Lasers).

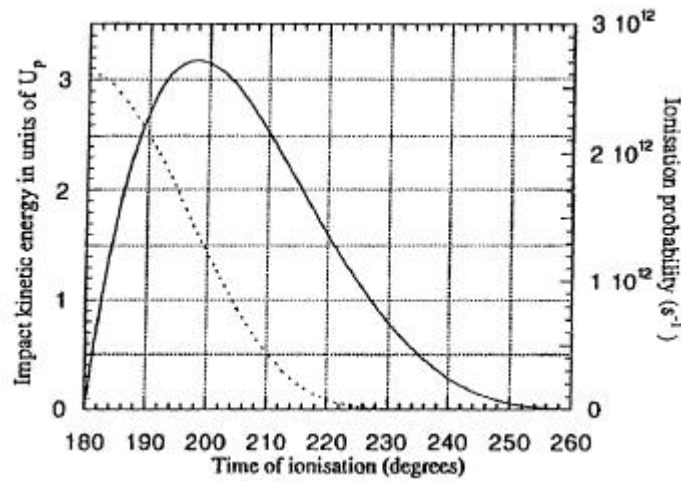
Klassisch handelt es sich natürlich um eine Punktladung in einem elektromagnetischen Feld. Der Einfachheit halber wird üblicherweise das Feld nur über die elektrische Komponente beschrieben und die magnetische ignoriert. Dies ist der Ausgangspunkt für das von Kulander *et al*, Schafer *et al* und insbesondere Corkum entwickelte "recollision-Modell". Die (natürlich nicht ganz zutreffende) Annahme lautet hierbei, dass das Elektron nach der Ionisation die Geschwindigkeit Null und auch einen Abstand Null vom Ion hat. Die Dynamik wird dann über die wohlbekannten Bewegungsgleichungen der Newtonschen Mechanik beschrieben [16][25].

Das weitere Schicksal des Elektrons ist nun im wesentlichen abhängig von der Polarisation des Lasers sowie vom Ionisationszeitpunkt relativ zur Laserphase. Es kann zunächst vom Ion fortbewegt und im Verlauf der Phasenänderung wieder zurück Richtung Kern beschleunigt werden. In diesem Fall trifft es wieder auf das Ion ("recollision") und kann sogar mit ihm rekombinieren, was die Abstrahlung eines Photons zur Folge hat.



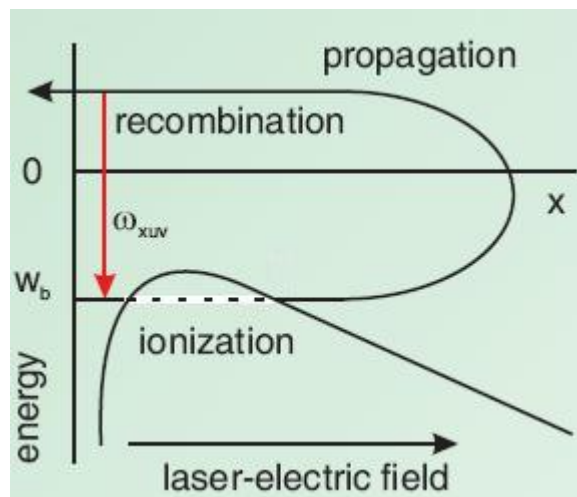
**Abbildung 2.7:** Kernabstand und kinetische Energie des Elektrons nach der Ionisation in Abhängigkeit von der Laserphase  $\alpha = \omega_0 t$  für verschiedene Ionisationszeitpunkte bzw. -phasen  $\alpha_0 = \omega_0 t_0$  (aus [26]).



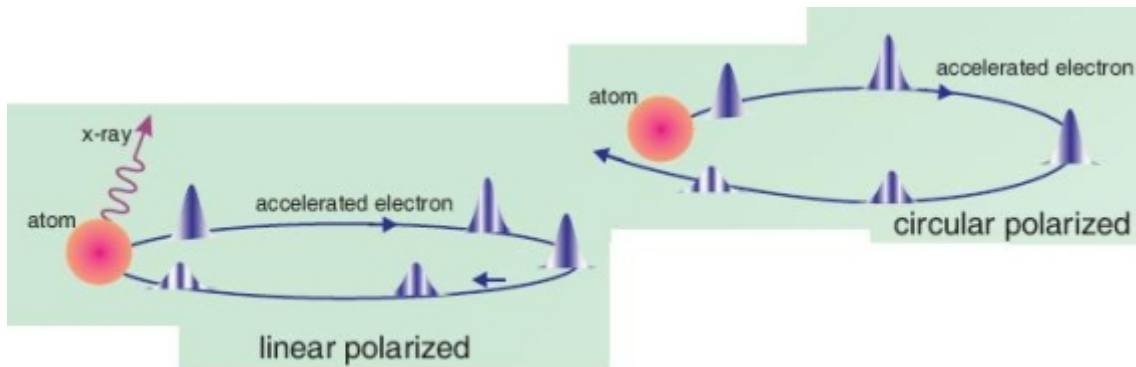


**Abbildung 2.8:** Recollision-Energie (als Vielfaches von  $U_p$ ) und Ionisationswahrscheinlichkeit (Tunnelionisation im Wasserstoff) als Funktion des Ionisationszeitpunktes (aus [16]).

Die kinetische Energie des Elektrons bei der Kollision ist maximal bei einer Anfangsphase (Laserphase bei "Geburt" des Elektrons) von  $17^\circ$  und  $197^\circ$ ; es gilt dann:  $E_{kin} \approx 3,17 \cdot U_p$ . Das emittierte Photon besitzt somit eine maximale Energie von etwa  $I_p + 3,17 \cdot U_p$  [16]. Dieses eher einfache, klassische recollision-Modell beschreibt korrekt die eben genannten Maximalenergien und erklärt die zeitliche Struktur der emittierten Strahlung. Außerdem kann man zeigen, dass eine Kollision nur bei linearer Polarisierung der Laserstrahlung stattfinden kann. Die Intensität der Rekombinationsstrahlung wird mit steigender Elliptizität immer stärker unterdrückt und verschwindet bei zirkularer Polarisierung [27].



**Abbildung 2.9:** Ionisation-Propagation-Rekombination: Das Elektron tunnelt durch die Potentialbarriere, entfernt sich vom Kern und kehrt wieder zurück. Bei der Rekombination entsteht höherenergetische Strahlung ( $\omega_{XUV}$ ) (aus [28]).



**Abbildung 2.10:** Bei zirkularer Polarisation ist keine Rekombination von Ion und Elektron (hier als Wellenpaket dargestellt) möglich (aus [28]).

## 2.1.8 Mehrfachionisation

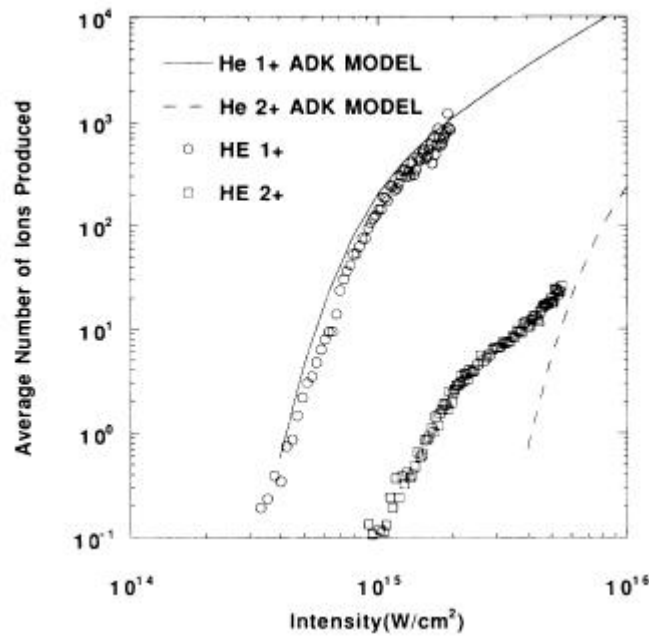
Die Physik starker Felder wird meist unter der Annahme diskutiert, dass nur ein einziges Elektron des Atoms mit dem Laserfeld wechselwirkt bzw. ionisiert wird, die anderen Elektronen werden als Zuschauer betrachtet. Selbstverständlich kann das System aber auch darüber hinaus ionisiert werden.

Der nächste logische Schritt ist die Doppelionisation. Hier sind prinzipiell zwei Möglichkeiten vorstellbar: die simultane Emission zweier Elektronen und ein schrittweiser Verlauf. Welcher der Prozesse dominiert, ist abhängig von Wellenlänge, Intensität und Pulslänge des Lasers [29]. Ein mehrstufiger Verlauf kann wiederum auf zwei Arten vonstatten gehen:

- Bei einem sequentiellen Prozess wird zunächst das Atom einfach ionisiert und anschließend das entstandene Ion wiederum einfach ionisiert. In beiden Fällen ist das Feld für die Ionisation verantwortlich. Allerdings wurde seit den ersten Beobachtungen klar, dass die Doppelionisationsraten zu hoch sind, als das sie allein durch diesen Prozess erklärt werden könnten.
- Der nicht-sequentielle Prozess ist auch wieder auf verschiedene Arten realisierbar. Bei einem "shake-up" kollidiert während der Einfachionisation das Photoelektron auf dem Weg durch das Atom mit einem anderen Elektron und regt dieses an. In diesem Zustand besteht eine hohe Wahrscheinlichkeit für ein Herauslösen auch dieses Elektrons durch das Feld. Im Falle des "shake-off" befördert das erste Elektron wie in einer Stoßionisation direkt das andere Elektron aus dem Atom. Eine weitere Möglichkeit ergibt sich durch den zuvor bereits angesprochenen recollision-Prozess. Statt einer Rekombination kann wie beim "shake-off" das Elektron ein anderes Elektron inelastisch stoßen und das Atom nochmals ionisieren [27][30].

Experimentell lässt sich bei der Produktion von einfach geladenen Ionen ab einer gewissen Intensität eine Saturation beobachten - die Ionisationswahrscheinlichkeit nähert sich 100%. Zweifach geladene Ionen würden im Falle eines rein sequentiellen Prozesses und nach Rechnungen im Rahmen der ADK-Theorie erst bei deutlich höheren Intensitäten merkliche Ionisationsraten aufweisen. Der doppelt geladene Zustand könnte erst entstehen, wenn die Saturation der Einfachionisation einsetzt. Allerdings

lassen sich beispielsweise für Helium schon bei geringerer Intensität erhöhte Raten nachweisen, was auf die nicht-sequentielle Doppelionisation hindeutet [31]. Rechnungen mit dem recollision-Modell bestätigen die Vermutung [25].

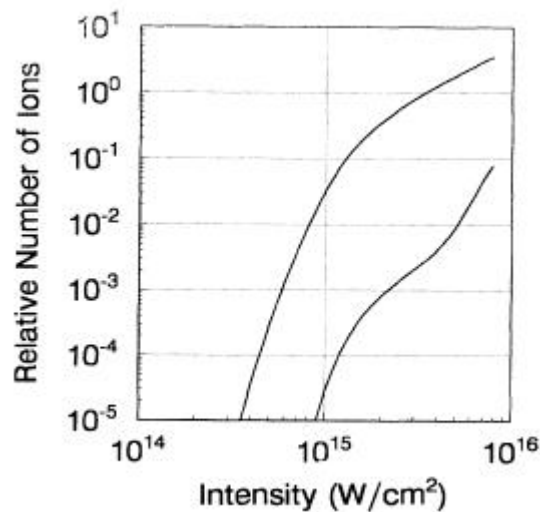


**Abbildung 2.11:** Vergleich experimenteller Werte für die Helium-Ionisation mit der ADK-Theorie. Zweifach positive Ionen treten entgegen der Theorie schon bei geringeren Intensitäten verstärkt auf (aus [31]).

Höhere Ladungszustände können wiederum schrittweise erzeugt werden. Je höher die Laser-Intensität, desto höhere Ladungszustände sind möglich. Allerdings besitzt ein Laserpuls keine homogene Intensitätsverteilung, die Maximalintensität wird also nicht überall erreicht. Somit entstehen bei höheren Intensitäten auch niedrigere Ladungszustände [29]; je höher die Intensität, desto mehr unterschiedliche Ladungszustände werden auch erzeugt.

## 2.2 Eigenheiten der Moleküle

Allein durch die Tatsache, dass ein Atom zu einem zweiten eine chemische Bindung herstellt, nimmt die Zahl der zusätzlich möglichen Prozesse erheblich zu. Schon im einfachsten Fall der diatomaren, homonuklearen Moleküle sind durch die inneren Freiheitsgrade Vorgänge wie Rotation und Vibration möglich, die die Betrachtungen (speziell die Spektroskopie) im Vergleich zu einzelnen Atomen komplexer wie auch interessanter machen. Im Folgenden soll kurz auf die für dieses Experiment wichtigen Aspekte eingegangen werden.



**Abbildung 2.12:** Mit dem Recollision-Modell berechnete Rate der einfach (links) und doppelt (rechts) geladenen Heliumionen als Funktion der Laserintensität. Verwendet wird ein ca. 100 fs kurzer Laserpuls mit räumlich wie zeitlich gaußförmigem Profil (aus [25]).

### 2.2.1 Rotation und Vibration

Grundsätzlich besitzen Moleküle bis zu drei Freiheitsgrade der Rotation, bei diatomaren Molekülen sind es lediglich zwei. Üblicherweise entsprechen diese Freiheitsgrade der Drehung um drei verschiedene Achsen (durch den Schwerpunkt), die senkrecht aufeinander liegen und in die die Rotation zerlegt wird. Die Bewegung ist natürlich den Spielregeln der Quantenmechanik unterworfen, was vor allem eine Quantisierung der Rotationsenergie zur Folge hat. Für diatomare Moleküle wird üblicherweise das Modell des starren Rotators (Hantel-Modell) zur Beschreibung benutzt. Die Rotationsenergie lautet in diesem Fall:

$$E_{rot} = \frac{\hbar^2}{2I} J(J+1).$$

$I$  stellt das Trägheitsmoment um die jeweilige Rotationsachse und  $J$  die Rotationsquantenzahl dar. In der Spektroskopie werden oft sogenannte Termwerte  $F(J)$  verwendet:  $F(J) = E_{rot}(hc)^{-1} = B_0 J(J+1)$  mit der Einheit [ $cm^{-1}$ ].  $B_0$  wird als Rotationskonstante bezeichnet und ist eine für das jeweilige Molekül charakteristische Größe; es gilt:

$$B_0 = \frac{h}{8\pi^2 c I}.$$

Mit zunehmendem  $J$  ist der Abstand zwischen den Kernen nicht mehr als konstant ansehbar, d.h. man muss von einem nicht-starren Rotator ausgehen (Modell: zwei Atome über eine Feder miteinander verbunden). Grund ist die stärker werdende Zentrifugalkraft, die für eine Dehnung des Moleküls sorgt und einen zusätzlichen Energieterm ins Spiel bringt:

$$DJ^2(J+1)^2 \text{ mit } D = \frac{\hbar^3}{4\pi k I^2 R_E^2 c} [cm^{-1}].$$

D ist die sog. Dehnungskonstante,  $R_E$  der Gleichgewichtsabstand zwischen den Atomen und k die Federkonstante.

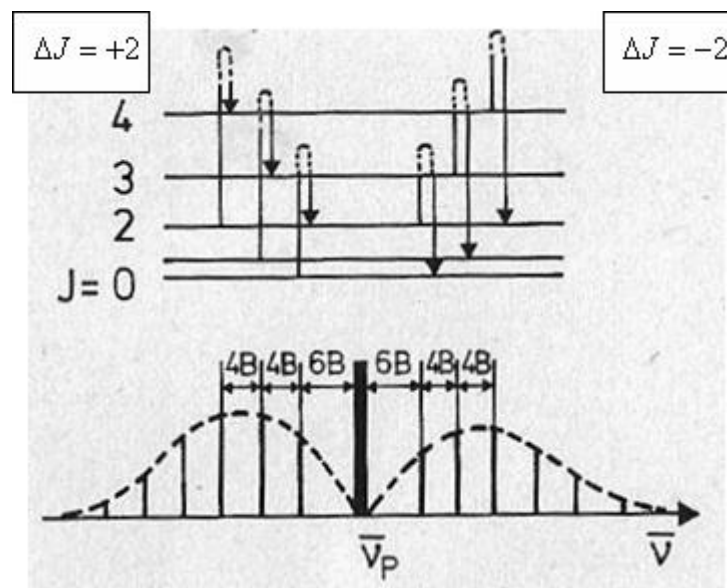
Aus dem Modell des nicht-starren Rotators folgt unmittelbar, dass die Moleküle auch um ihre Gleichgewichtslage *schwingen* können, entsprechend einem harmonischen Oszillator. Die Vibrationsenergie lautet:

$$E_{vib} = \hbar\omega\left(v + \frac{1}{2}\right).$$

$\omega$  entspricht der klassischen Kreisfrequenz eines Oszillators,  $v$  ist die Vibrationsquantenzahl mit den Werten 0,1,2 usw.

Vibration und Rotation sind eng miteinander verknüpft. Reine Rotationübergänge sind möglich, während Vibrationen immer auch mit gleichzeitiger Rotationsanregung oder -abregung verbunden sind. Andererseits nimmt der Vibrationszustand auch Einfluss auf die Rotation: Schwingungen ändern den Kernabstand, damit den Trägheitszustand und somit letztlich die Rotationskonstante. Die obigen Formeln für die Rotation gelten lediglich für den niedrigsten Vibrationszustand ( $v = 0$ )!

### 2.2.2 Rotations-Raman-Effekt



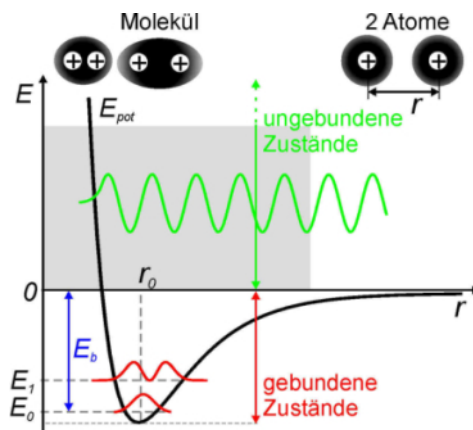
**Abbildung 2.13:** Entstehung des Rotations-Raman-Spektrums. Bei der unteren Darstellung liegt im Zentrum ( $\bar{\nu}_p$ ) die Rayleigh-Linie infolge elastischer Streuung; links sind die sog. Stokes- ( $\bar{\nu} - \bar{\nu}_p$  negativ), rechts die Antistokes-Linien ( $\bar{\nu} - \bar{\nu}_p$  positiv) zu sehen (aus [32]).

Bei der inelastischen Streuung von Licht an Molekülen treten im Streuspektrum zahlreiche Linien auf, die gegenüber der primären Strahlung um bestimmte Frequenzbeträge verschoben sind. Diese Beobachtung wird als Raman-Effekt bezeichnet. Die Linien entsprechen Übergängen zwischen verschiedenen Rotations- und Vibrationsniveaus der Moleküle. Die Frequenzverschiebungen sind unabhängig von der einfallenden Strahlung und charakteristisch für das jeweilige Molekül.

Für diese Diplomarbeit ist speziell der Rotations-Raman-Effekt von Interesse, bei dem die Energieunterschiede zwischen den Linien Rotationsquanten entsprechen. Die quantenmechanische Auswahlregel (für einen linearen Rotator) lautet:  $\Delta J = \pm 2$ . Dafür gibt es auch eine klassische Erklärung: Im Modell eines hantelförmigen Moleküls besitzt dieses die beiden Polarisierbarkeiten  $\alpha_{\perp}$  und  $\alpha_{\parallel}$  (senkrecht bzw. parallel zur Molekülachse), die Hauptkomponenten des Polarisierbarkeitstensors. Klassisch gesehen induziert die elektromagnetische Welle ein periodisch oszillierendes Dipolmoment und das Molekül emittiert Streustrahlung mit der Frequenz der Primärstrahlung. Rotiert das Molekül, so erfährt das Dipolmoment eine zusätzliche periodische Modulation/Oszillation. Die Frequenzmodulation der Streustrahlung beträgt zweimal die Rotationsfrequenz des Moleküls, da bereits nach einer  $180^{\circ}$ -Drehung wieder die gleiche Polarisierbarkeit (Symmetrie des Polarisierbarkeitstensors) bzw. das gleiche Dipolmoment vorherrscht. Quantenmechanisch entspricht die Frequenzänderung einer Änderung der Rotationsquantenzahl um  $2J$  [32].

### 2.2.3 Dissoziation

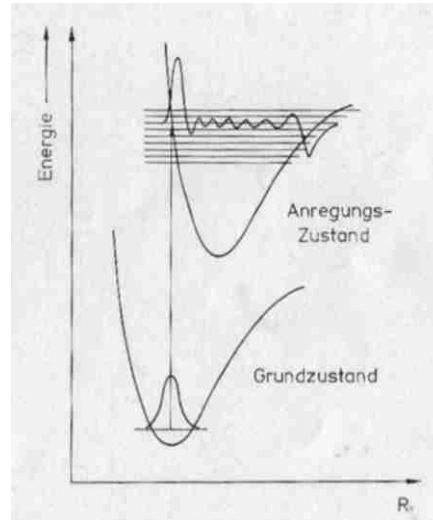
Moleküle lassen sich so stark anregen, dass die die Bindungsenergie überwunden wird und die Atomkerne sich voneinander lösen. Die Anregung kann z.B. durch thermische Stöße oder Strahlungsabsorption stattfinden. Letztere Möglichkeit wird als Photodissoziation bezeichnet und ist der für uns relevante Fall.



**Abbildung 2.14:** Gebundene und ungebundene Zustände in der Potentialdarstellung (aus [33])

Eine direkte Photodissoziation (d.h. ohne elektronische Anregung) ist speziell aufgrund des Franck-Condon-Prinzips sehr unwahrscheinlich. Nach diesem Prinzip kann ein elektronischer Übergang aufgrund der viel geringeren Elektronenmasse gegenüber Kernschwingungen als instantan angesehen werden, bei einer Änderung des Kernabstands erfolgt demnach auch die Anpassung an diesen neuen Zustand unverzüglich. Des Weiteren finden elektronische Übergänge bevorzugt bei konstanter Schwingungsquantenzahl statt. Möglich ist die direkte Dissoziation fast nur durch Mehrfachabsorption von

Schwingungsquanten ( $h\nu_{vib}$ ), die über virtuelle Zwischenzustände erfolgt.



**Abbildung 2.15:** Zum Franck-Condon-Prinzip: Da sich bei Elektronenübergängen die Kernabstände nur unwesentlich ändern, erfolgen diese Übergänge im Potentialdiagramm überwiegend vertikal. Eine Schwingungsanregung erfolgt vom Grundzustand aus am wahrscheinlichsten in einen Schwingungszustand, bei dem das Maximum seiner Wellenfunktion senkrecht darüber liegt (aus [32]).

Eine indirekte Photodissoziation ist zum einen leicht möglich durch eine elektronische Anregung plus einer Schwingungsanregung [32]. Zum anderen kann eine Ionisation das Potential so verändern, dass keine stabile Bindung mehr möglich ist. Ob das Molekül in diesem Fall dissoziiert, hängt natürlich vom Grad der Ionisation und von der Zahl der restlichen Elektronen ab. Je mehr Elektronen noch verbleiben, desto eine geringere Rolle spielt der "Verlust" von z.B. ein oder zwei Elektronen für die Molekülbindung.

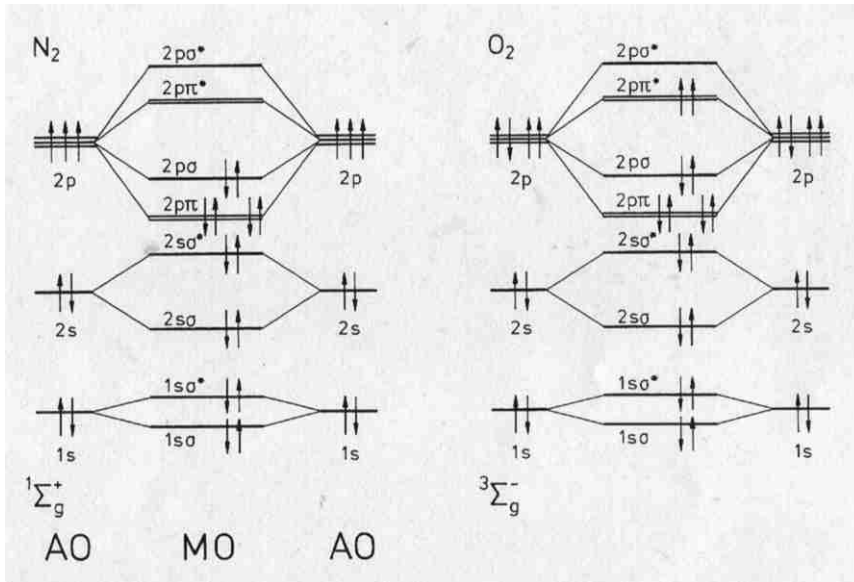
Eine neuartige Möglichkeit ergibt sich durch die Verwendung starker Laserpulse. Sofern die Moleküle nicht ionisiert werden (je nach Intensität), kann mithilfe der Pulse eine extrem hohe Rotationsanregung stattfinden. Dadurch kann die Zentrifugalkraft so stark werden, dass sie die bindende Kraft überwindet und die Moleküle regelrecht auseinanderreißt [34].

## 2.2.4 Nomenklatur von Molekülorbitalen und -zuständen

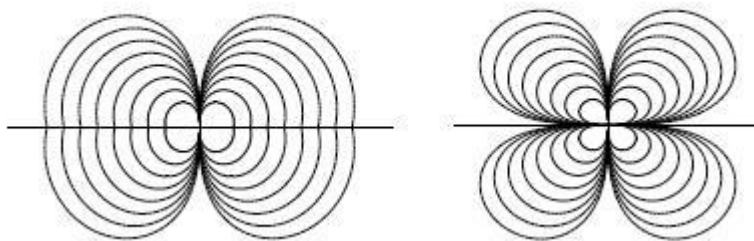
Neben der Bezeichnung der einzelnen Orbitale (siehe Abbildung 2.16) ist die Charakterisierung des Gesamtzustands des Moleküls von Bedeutung. Die allgemeine Notation hierfür lautet:

$$Y^{2S+1}\Lambda_{g,u}^{+,-}$$

- Bei  $Y = X$  handelt es sich um den Grundzustand, bei  $Y = A, B, \dots$  liegen angeregte Zustände vor.



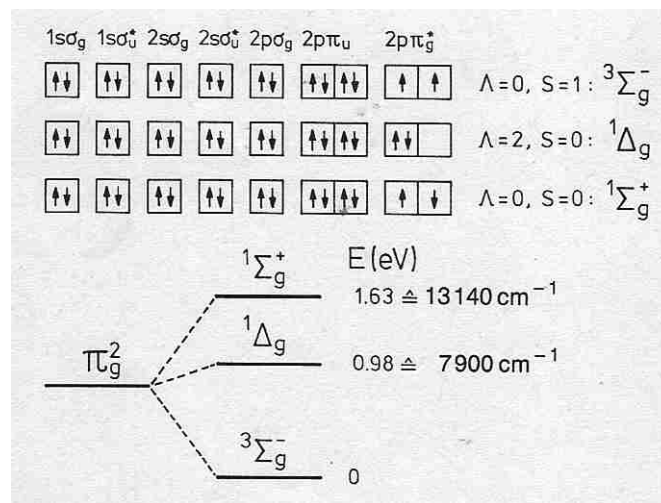
**Abbildung 2.16:** Entstehung von Molekülorbitalen (aus Atomorbitalen) sowie deren Elektronenbesetzung am Beispiel von Stickstoff und Sauerstoff (Grundzustand). Wesentliche Neuerung gegenüber Atomen ist die Quantenzahl  $\lambda = 0, 1, 2, \dots$  für die Projektion des Drehimpulses auf die Molekülachse, welche den Orbitalen die Bezeichnungen  $\sigma, \pi, \delta, \dots$  verleiht. Zudem muss zwischen bindenden und antibindenden (\*) Orbitalen unterschieden werden. Pfeile stehen für die zwei möglichen Spinrichtungen (aus [32]).



**Abbildung 2.17:** Kontur-Plot der Elektronendichte für das jeweils äußerste Orbital von  $N_2$  (links) bzw.  $O_2$  (aus [30]).



- S steht für die Gesamtspin-Quantenzahl und der Wert  $(2S+1)$  für die sog. Multiplizität des Zustands (mögliche Stellungen des Gesamtspins).
- $\Lambda$  entspricht im Grunde  $\lambda$  im Falle der einzelnen Orbitale, nur das es hier nun um den Gesamtbahndrehimpuls geht;  $\Lambda = 0, 1, 2, \dots$  ergibt demnach die Zustände  $\Sigma, \Pi, \Delta$  etc.
- g (= gerade) bzw. u (= ungerade) geben die Symmetrie der Gesamtwellenfunktion des Moleküls bei Punktspiegelung an seinem Schwerpunkt an.
- +/- macht eine Aussage über das Symmetrieverhalten (symmetrisch/antisymmetrisch) der Wellenfunktion bei Spiegelung der Kerne an einer Ebene, die beide Kerne beinhaltet.



**Abbildung 2.18:** Oben: Mögliche Konfigurationen der zwei äußersten Elektronen im Sauerstoff-Molekül, unten: Die unterschiedlichen Energielevels der entsprechenden Zustände (aus [32]).

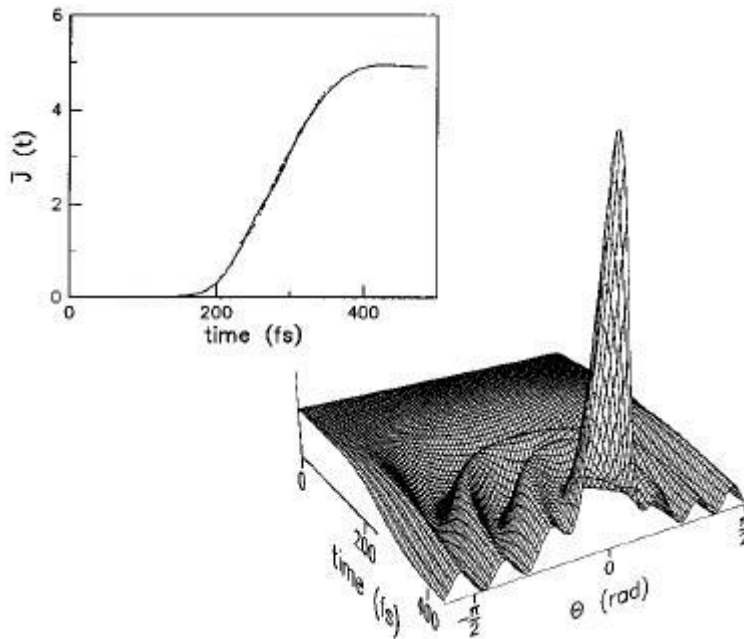
## 2.3 Die Ausrichtung von Molekülen

Diese Arbeit dient insbesondere auch der Schaffung notwendiger Voraussetzungen für das Ausrichten von Molekülen, speziell von homonuklearen, diatomaren Molekülen. Für diesen Typ von Molekülen bedeutet dies einfach eine Ausrichtung entlang der Verbindungsachse beider Atome. Wie lässt sich eine solche Ausrichtung bewerkstelligen? Das naheliegendste "Werkzeug" ist wohl ein (starkes) elektrisches Feld, was auch vielfach erfolgreich angewandt wurde. Durch das  $\vec{E}$ -Feld wird das diatomare Molekül polarisiert und ein Dipolmoment induziert. Klassisch betrachtet übt das Feld ein Drehmoment auf den Dipol bzw. das Molekül aus, dessen Stärke neben  $|\vec{E}|$  von der Stellung der Molekülachse zum elektrischen Feldvektor abhängt. Der Effekt ist eine Ausrichtung der Molekülachsen entlang der Feldrichtung.

Der Erfolg dieser Technik legt den Gedanken an den Einsatz des starken, elektromagnetischen Wechselfeldes eines Lasers nahe. Der Vorteil liegt hier darin, dass (insbesondere mit gepulsten Lasern) erheblich höhere Feldstärken erreicht werden können, die zur Ausübung eines merklichen Drehmoments

nötig sind. Hierbei ist darauf zu achten, dass die Pulsintensität nicht zu hoch ist, sodass möglichst wenige Ionisationen stattfinden und die Moleküle nicht auseinanderbrechen (dissoziieren).

Quantenmechanisch betrachtet findet durch den Laserpuls eine Rotationsanregung (d.h. ein Austausch von Drehimpulsquanten zwischen Feld und Molekül) statt, die in einem breiten Wellenpaket aus einer kohärenten Überlagerung von (Gesamt-)Drehimpulszuständen resultiert. Dieses sog. Rotationswellenpaket besitzt im Winkelraum eine relativ schmale Verteilung mit einem Maximum in Richtung der Laserpolarisation.



**Abbildung 2.19:** Durch einen Laserpuls angeregtes Rotationswellenpaket für die elektronischen Grundzustände von LiH aufgetragen gegen die Zeit und den Euler-Winkel  $\Theta$  (bezüglich Polarisationsrichtung). Der Puls ist gaußförmig mit einer Länge von ca. 100fs und einer Intensität von  $10^{11} \frac{W}{cm^2}$ . Die Kurve links oben zeigt die zeitliche Entwicklung der mittleren Drehimpulsquantenzahl  $\bar{J}$  (aus [35]).

Es lässt sich zeigen, dass die Ausrichtung der Moleküle für kurze Zeit bestehen bleibt und sich später zu gewissen Zeiten wieder einstellt. Durch den Laserpuls ist also demnach (so paradox es sich auch anhört) ein feldfreies Ausrichten möglich.

Der Grad der Ausrichtung hängt u.a. von den Rotationszuständen  $|J_i\rangle$  (bzw. den entsprechenden Quantenzahlen  $J_i$ ) ab, die zum Wellenpaket beitragen. Quantitativ wird er üblicherweise durch den Erwartungswert von  $\cos^2 \theta$  definiert,  $\theta$  ist dabei der Winkel zwischen Polarisationsrichtung und Molekülachse (projiziert auf die Polarisationssebene). Für  $\langle \cos^2 \theta \rangle = 1$  wäre eine maximale Ausrichtung erreicht, bei  $\langle \cos^2 \theta \rangle = 0.5$  ist die Verteilung vollkommen isotrop.

Schaltet man das Feld sozusagen ab (d.h. hat der Laserpuls das Molekül passiert), so bleibt die Zusammensetzung des Wellenpakets bezüglich der Rotationszustände erhalten, die Phasen verschieben sich jedoch gegeneinander (engl.: dephasing) [35].

Was im folgenden genauer beleuchtet werden soll, ist der Fall kurzer Pulse. Hierbei liegt die Pulsdauer  $\tau$  unterhalb der Rotationsperiode  $\tau_{Rot}$  des Moleküls ( $\tau < \tau_{Rot}$ ) - der Prozess ist nicht-adiabatisch. Der Puls hinterlässt das System in einer kohärenten Superposition von Rotationszuständen. Das "dephasing"

verläuft umso schneller, je breiter das Wellenpaket im J-Raum ist. Die zuvor erwähnte Wiederkehr (engl.: revival) der Ausrichtung tritt periodisch auf, solange die Kohärenz gewahrt bleibt [36]. Im feldfreien Zustand, also nach der eigentlichen Ausrichtung durch den Laserpuls, wird sogar eine Verbesserung der Ausrichtung erreicht [37]. In Experimenten wurde bis zum zehnten revival eine Ausrichtung beobachtet, wobei kein signifikantes "Netto-dephasing" feststellbar war. Eine gewissermaßen natürliche Limitierung des Grades der Ausrichtung ist allerdings durch die wärmebedingte Anfangsrotation der Moleküle gegeben. Des Weiteren begrenzt die Pulsintensität die Ausrichtbarkeit. Da der Puls nicht ionisieren soll, darf nur eine bestimmte Photonendichte erreicht werden, was wiederum auch die Zahl der Rotationsanregungen des Molekülensembles beschränkt [38].

Für ultrakurze Pulse ( $\tau \ll \tau_{Rot}$ ) entspricht die Interaktion mit dem Puls im zeitlichen Vergleich mit der Rotationsperiode nur einem Kraftstoß, einer Art "Kick". Es wird extrem schnell ein großer Drehimpulsbetrag zum System transferiert und die Ausrichtung setzt erst nach der Wechselwirkung ein [36]. Schauen wir uns nun die Quantenmechanik des ganzen Vorgangs einmal etwas genauer an. Der Laserpuls bewirkt einen Drehimpulsübertrag auf die Moleküle, was zu einer Besetzung höherer Rotationsniveaus durch eine Reihe von (Rotations-)Raman-Übergängen führt. Für die Quantenzahl J des Gesamtdrehimpulses gilt folgende Auswahlregel:

$$\Delta J = \pm 2, \Delta M = 0.$$

M ist die Projektion des Drehimpulses auf die Polarisationsachse, deren Verteilung durch den Puls also nach dieser Regel nicht geändert wird. Die Zeitentwicklung des entstehenden Rotationswellenpaketes kann als Summe über alle molekularen Rotationszustände beschrieben werden:

$$\Psi(t) = \sum_J a_J \cdot e^{-i(E_J/\hbar)t} |J, M\rangle.$$

$E_J$  sind dabei die Eigenenergien der Zustände,  $|J, M\rangle$  die Kugelflächenfunktionen und  $a_J$  die Amplituden. Im niedrigsten Vibrationszustand lauten die Eigenenergien:

$$E_J \approx hcB_0 \cdot J(J+1).$$

$B_0$  stellt hier die Rotationskonstante des Grundzustandes dar und wird vom Trägheitsmoment I des Moleküls bestimmt:  $B_0 = \frac{h}{8\pi^2 c I}$ . Jeder Zustand  $|J\rangle$  im Rotationswellenpaket verschiebt seine Phase mit einer Winkelgeschwindigkeit  $\omega_J = \frac{1}{2}J(J+1)\omega_1$ . Die Fundamentalfrequenz  $\omega_1$  ist die Winkelgeschwindigkeit des Zustandes  $|1\rangle$  und es gilt:  $\omega_1 = 4\pi B_0 c$ . An dieser Stelle wird ignoriert, dass speziell bei hohen  $|J\rangle$ -Zuständen eine merkliche zentrifugale Verformung auftritt, die Einfluss auf Winkelgeschwindigkeit und Energie hat.

Im Zuge des "dephasing" geht die zuvor erreichte Ausrichtung zwar verloren, allerdings nicht vollkommen; eine schwache, inkohärente "Rest-Ausrichtung" bleibt bestehen ( $\langle \cos^2 \theta \rangle > 0.5$ ). Der Grund dafür ist der folgende: Vor Ankunft des Laserpulses kann die relative Verteilung der einzelnen  $|J\rangle$ -Zustände mittels der Boltzmann-Verteilung beschrieben werden, für jedes J sind die möglichen Werte von M gleichmäßig verteilt. Der Laserpuls ändert die  $|J\rangle$ -Verteilung durch die erwähnten Raman-Übergänge, d.h. An- und Abregungen. Dabei ist offensichtlich, dass für Abregungen ein unteres Limit (der Zustand  $|0\rangle$ ) existiert, für Anregungen jedoch nicht. Die Folge ist demnach ein gewisse "Netto-Anregung" - der Erwartungswert von J ist größer als vor dem Puls. Für M ergibt sich nun aber infolge der entsprechenden Auswahlregel keine Änderung der Verteilung. Somit sind im Ergebnis die Vektoren

der Drehimpulszustände bevorzugt senkrecht zum Polarisationsvektor gerichtet, was einer schwachen Ausrichtung der Molekülachsen entlang diesem entspricht.

Die Wiederkehr der eigentlichen, deutlich stärkeren Ausrichtung findet dann statt, wenn die angesammelten Phasen aller Rotationszustände gleich Vielfachen von  $2\pi$  sind ("full wave-packet revival"). Bis zum ersten "revival" vergeht die Zeit  $T_1 = \frac{2\pi}{\omega_1}$ , anschließend laufen die Phasen wieder auseinander usw. Neuerliche "revivals" treten nach den Zeiten  $T_n = n \cdot T_1$  ( $n=1,2,3$  etc.) auf [39].

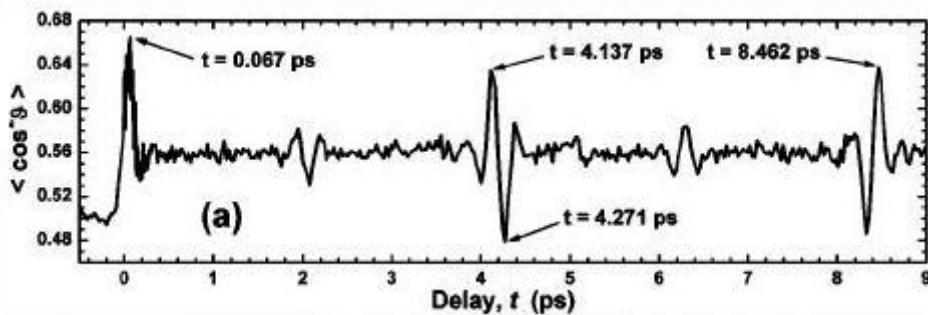


Abbildung 2.20: Revival-Struktur für  $N_2$ -Moleküle (aus [39]).

Zum Ende sollte die Beziehung zwischen der Ausrichtung von Molekülen und der zuvor diskutierten Multiphotonen-Ionisation nicht unerwähnt bleiben. Die Ionisationswahrscheinlichkeit zeigt nämlich eine Abhängigkeit von der Stellung der Molekülachse bzw. von einer zuvor induzierten Ausrichtung. Dabei zeigen experimentelle Werte beispielsweise für die Einfachionisation von Stickstoff eine ca. vierfach höhere Wahrscheinlichkeit für parallel zum elektrischen Feldvektor ausgerichtete Moleküle im Vergleich zu senkrecht ausgerichteten [38].

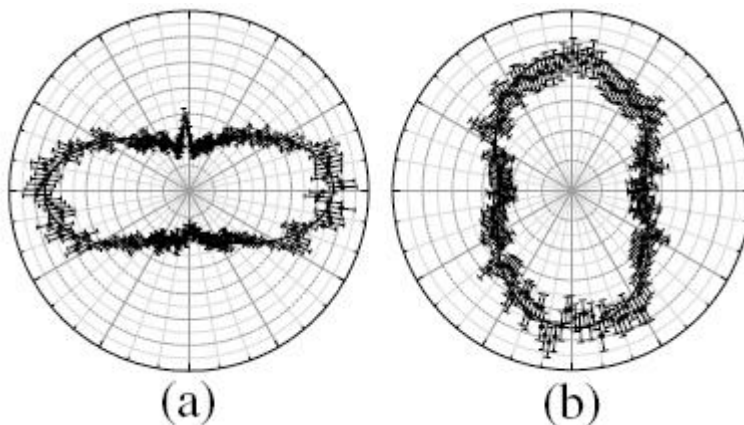


Abbildung 2.21: Die Winkelabhängigkeit der Ionisationswahrscheinlichkeit für  $N_2$ -Moleküle: Zu sehen sind experimentelle Winkelverteilungen ( $dN(\theta)/d\theta$ ) im Falle einer (a) maximalen Ausrichtung entlang des Feldes (horizontale Polarisation) und (b) Ausrichtung senkrecht zum Feld (aus [38]).

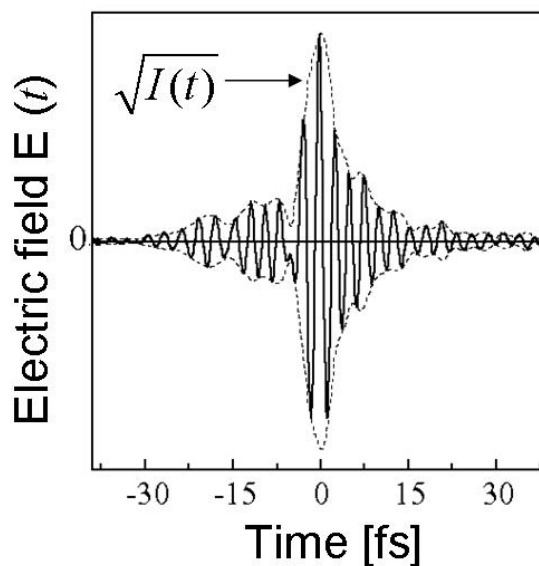
## 2.4 Filamentation und Kompression von Laserpulsen

Der folgende Abschnitt beschäftigt sich mit der Entstehung von sog. Laser-Filamenten in transparenten Gasen und deren Fähigkeit zur zeitlichen Kompression von Pulsen.

### 2.4.1 Ultrakurze Laserpulse

Zunächst müssen wir klären, wie genau sich die bereits vielfach erwähnten (ultrakurzen) Laserpulse beschreiben lassen und welche speziellen Eigenschaften sie besitzen. Im Vordergrund steht dabei natürlich ihre Zeitabhängigkeit, genauer gesagt die ihres elektrischen Feldes, welche folgendermaßen formuliert werden kann:

$$E(t) = \frac{1}{2} \sqrt{I(t)} \cdot \exp(i\omega_0 t) \cdot \exp(-i\phi(t)).$$



**Abbildung 2.22:** Beispiel für das elektrische Feld eines ultrakurzen Laserpulses samt seiner Einhüllenden (aus [40]).

$\sqrt{I(t)}$  beschreibt dabei die Einhüllende des Pulses,  $\phi(t)$  den Zeitverlauf der Phase.  $\omega_0$  wird als mittlere Frequenz oder Trägerfrequenz bezeichnet und sollte so gewählt werden, dass die Variation von  $\phi(t)$  minimiert wird. Des Weiteren nimmt man an, dass das Spektrum  $I(\omega)$  nur in einem Frequenzintervall  $\Delta\omega \ll \omega_0$  merkliche Werte größer Null besitzt [41][40].

Für Laserpulse von fundamentaler Bedeutung ist die Verbindung zwischen ihrer Dauer und ihrer spektralen (Band-)Breite. Die Fourier-Transformationen zwischen Zeit- und Frequenzdarstellung des Pulses

lauten:

$$\tilde{E}(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} E(t) \cdot \exp(i\omega t) dt$$

$$E(t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{E}(\omega) \cdot \exp(-i\omega t) d\omega.$$

Es lässt sich zeigen, dass für die zeitliche Länge  $\Delta t$  und die Bandbreite  $\Delta\omega$  folgende Unschärferelation gilt:

$$\Delta t \cdot \Delta\omega \geq \frac{1}{2}.$$

Die wichtige Konsequenz dieser Beziehung ist, dass zum Erreichen einer gewissen Pulslänge eine ausreichend große spektrale Bandbreite existieren muss. Die Gleichung  $\Delta t \cdot \Delta\omega = \frac{1}{2}$  ist nur für gaußförmige Pulse (in Raum und Zeit) erfüllbar und spiegelt einen sog. bandbreite-begrenzten oder fourierlimitierten Puls wieder. Zusätzlich muss dieser Puls außerdem ein symmetrisches Spektrum aufweisen, um diese Gleichung erfüllen zu können [7][40]. Eine Art Erkennungsmerkmal ist ein flacher Verlauf der sog. spektralen Phase  $\varphi(\omega)$  ( $\rightarrow$  E-Feld in der Frequenz-Domäne).

Das für besonders kurze Pulse notwendige breite Frequenzspektrum birgt eine besondere Problematik in sich. Die spektrale Breite  $\Delta\omega$  kann nun nicht mehr unbedingt als sehr klein gegenüber der mittleren Frequenz  $\omega_0$  angesehen werden, weswegen die (Wellenlängen-)Dispersion des linearen Brechungsindex stark zum Tragen kommt. Für den Wellenvektor  $k$  muss in dispersiven Medien mathematisch betrachtet eine Entwicklung um  $\omega_0$  durchgeführt werden:

$$k(\omega) = k(\omega_0) + k'(\omega - \omega_0) + \frac{1}{2}k''(\omega - \omega_0)^2 + \dots$$

Bei den Vorfaktoren ist

$$k' = \left( \frac{dk(\omega)}{d\omega} \right)_{\omega_0} \quad \text{und} \quad k'' = \left( \frac{d^2k(\omega)}{d\omega^2} \right)_{\omega_0}. \quad (2.1)$$

Es lässt sich leicht erkennen, dass bei immer stärkeren Abweichungen von der mittleren Frequenz (bei hohen Bandbreiten) die Terme höherer Ordnung sich umso stärker auswirken.

Wichtig ist nun für unsere Betrachtungen, dass die Nichtlinearität in  $k(\omega)$  zu einer Dispersion der Gruppengeschwindigkeit  $v_g$ , der sog. "group velocity dispersion" (GVD), führt. Die Gruppengeschwindigkeit unterscheidet sich also für die verschiedenen Frequenzkomponenten innerhalb eines Pulses. Im Allgemeinen gilt:

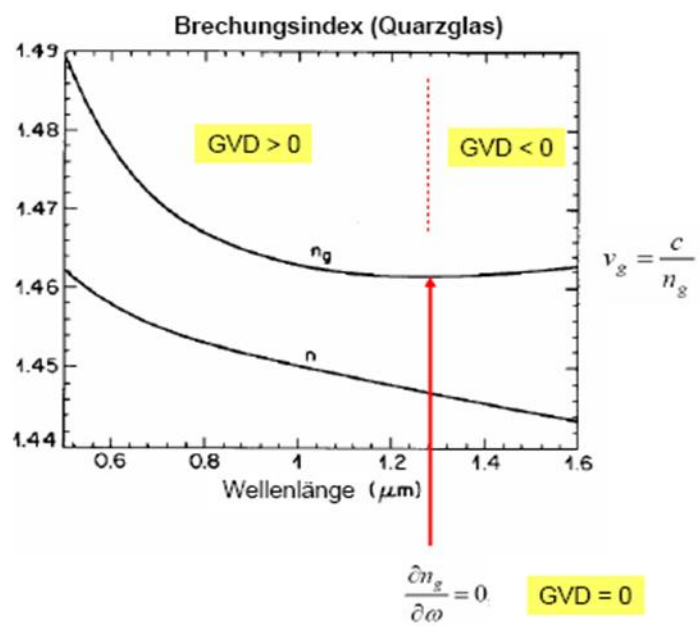
$$v_g = \left( \frac{d\omega}{dk} \right)_{\omega_0} = \frac{1}{(dk/d\omega)},$$

woraus sich für  $k''$  ergibt:

$$k'' = \frac{d}{d\omega} \left( \frac{1}{v_g(\omega)} \right)_{\omega_0} = -\frac{1}{v_g^2} \frac{dv_g}{d\omega}.$$

Letzterer Term drückt genau die Gruppengeschwindigkeitsdispersion aus.

Das Ganze lässt sich äquivalent auch über den Brechungsindex und die Wellenlänge ausdrücken, womit sich folgender Zusammenhang ergibt:  $k'' \propto \frac{d^2n}{d\lambda^2}$ ; anhand von Abbildung 2.23 lassen sich so die verschiedenen Regime der GVD verdeutlichen.



**Abbildung 2.23:** Die Wellenlängenabhängigkeit des Brechungsindex von Quarzglas und die verschiedenen Regionen der "group velocity dispersion" (aus [42]).

Selbst wenn es sich um einen fourier-limitierten Puls handelt, modifiziert die Dispersion während der Propagation im Medium (wegen der unterschiedlichen Geschwindigkeiten) die Phasenlage der einzelnen Frequenzkomponenten und der Puls läuft zeitlich gesehen auseinander. Das Problem ist umso gravierender, je größer die spektrale Breite und je kürzer der Puls ist.

### 2.4.2 Nichtlineare Optik

Bevor wir zur genauen Beschreibung des Filamentationsprozesses kommen, müssen zunächst einige Grundlagen hinsichtlich der Effekte der nichtlinearen Optik gelegt werden, die diese sozusagen den Schlüssel zur Filamentation wie auch zur Pulskompression darstellen. In der nichtlinearen Optik behandelt man Phänomene, bei denen höhere Potenzen der elektrischen (und magnetischen) Feldstärke dominieren. Klassisch geht man bei der Ausbreitung von Licht von einer linearen Beziehung zwischen elektromagnetischem Feld und dem Medium bzw. atomaren System aus. Unter dem Einfluss von extrem intensiver Strahlung jedoch, machen sich nichtlineare Effekte bemerkbar, die mit "normalen" Lichtquellen wie z.B. einfachen Glühlampen nicht beobachtbar sind. Unter Einsatz von Lasern (insbesondere im gepulsten Betrieb) hingegen erreicht man Feldstärken, die die optischen Materialeigenschaften *selbst* verändern und diese intensitätsabhängig werden lassen.

Elektromagnetische Wellen üben eine Kraft auf die äußeren Elektronen eines atomaren Systems aus; im Falle eines isotropen Mediums und moderater Feldstärken ist die entstehende elektrische Polarisation  $\vec{P}$  parallel und proportional zur Feldstärke  $\vec{E}$ , die Polarisation "folgt" dem sie verursachenden Feld:

$$\vec{P} = \epsilon_0 \chi \vec{E}.$$

$\epsilon_0$  stellt wie üblich die Vakuum-Dielektrizitätskonstante,  $\chi$  die elektrische Suszeptibilität dar.

Geht man nun zu sehr starken Feldern über, so reden wir von Feldstärken, die mit denen im Innern der Atome vergleichbar sind.  $P$  wächst nicht unendlich linear an und es tritt ein Effekt ähnlich einer Sättigung auf. Die nun an Bedeutung gewinnende Nichtlinearität lässt sich mit einer Reihenentwicklung von  $P$  verdeutlichen:

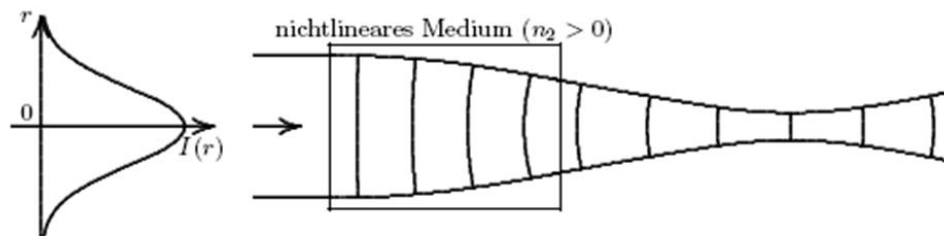
$$P = \epsilon_0 (\chi^{(1)} E + \chi^{(2)} E^2 + \chi^{(3)} E^3 + \dots) = P^{(1)} + P^{(2)} + P^{(3)} + \dots$$

Für die nichtlinearen Suszeptibilitäten  $n$ -ter Ordnung gilt:  $\chi^{(1)} \gg \chi^{(2)}, \dots, \chi^{(n)}$ ; ein merklicher Beitrag der Terme höherer Ordnung kommt daher nur bei entsprechend starken Feldern zustande. Bei obiger Formel geht man wie im linearen Fall von einem Polarisationsvektor parallel zum  $E$ -Feld aus, im allgemeinen handelt es sich bei den Größen  $\chi^{(n)}$  aber um Tensoren. Die Formel ist zudem nur unter der Annahme gültig, dass das Medium instantan auf das äußere Feld antwortet und außerdem kein "Erinnerungsvermögen" besitzt (für elektronische Effekte berechtigt). Zusammengefasst kann man die Folge des Prozesses (Lichtwelle trifft auf Medium) als eine Art "Polarisationswelle", eine sich wellenförmig ausbreitende Umverteilung der Ladungen durch den Einfluss des EM-Feldes, beschreiben. Hierbei ändern die Terme höherer Ordnung das Profil der abgestrahlten Welle gegenüber der einfallenden und führen u.a. zur Erzeugung höherer Harmonischer [43][41].

Generell existiert eine ganze Fülle von nichtlinearen optischen Effekten, wobei ihre Zahl mit der Ordnung der Suszeptibilität stark anwächst. Die Beschreibung all dieser Phänomene würde den Rahmen



dieser Diplomarbeit natürlich vollends sprengen und wäre zudem nicht hilfreich. Das Hauptaugenmerk liegt daher auf den Effekten, die den Filamentationsprozess und zudem die Erzeugung ultrakurzer Pulse (siehe Kapitel 3.1) im wesentlichen diktieren. Diese Effekte basieren auf der Suszeptibilität dritter Ordnung, die sich besonders in einem Aspekt fundamental von der zweiten Ordnung unterscheidet: Im Falle der  $\chi^{(2)}$ -Nichtlinearität verschwinden die Effekte in Systemen mit Inversionszentrum, bei  $\chi^{(3)}$  jedoch nicht. Sie können z.B. in Flüssigkeiten wie auch in amorphen Festkörpern beobachtet werden. Die zwei für unsere Belange zentralen Phänomene sind die Selbstphasenmodulation (SPM) und die Selbstfokussierung (SF), die beide auf der Intensitätsabhängigkeit des Brechungsindex basieren (Kerr-Effekt). Bei der Wechselwirkung einer hochintensiven elektromagnetischen Welle mit einem isotropen Medium ändert diese dessen Dielektrizitätskonstante  $\epsilon$ , was automatisch auch einen veränderlichen Brechungsindex  $n$  bedeutet. In niedrigster Ordnung gilt die Beziehung  $n = n_0 + \bar{n}_2 I$ , wobei  $n_0$  der "normale", lineare und  $\bar{n}_2$  der nichtlineare Brechungsindex ist. Die genannten Effekte ergeben sich aufgrund der nicht konstanten räumlichen und zeitlichen Intensitätsverteilung von Laserpulsen. Haben wir es beispielsweise mit einer gaußförmigen Verteilung in Ort und Zeit zu tun, so folgt auch der Brechungsindex dieser Gauß-Funktion. Im Falle der Selbstfokussierung ist die räumliche Verteilung entscheidend: bei positivem  $\bar{n}_2$  ist  $n$  im Zentrum (höchste Intensität) am größten und fällt an den Flanken ab, ein negatives  $\bar{n}_2$  liefert die entsprechend umgekehrten Resultate. Im ersten Fall wirkt das Medium als Sammellinse, im zweiten als Zerstreuungslinse; das Phänomen wird daher auch als "Kerr-Linsen-Effekt" bezeichnet. Die Erklärung hierfür liefert eine Betrachtung der Phasengeschwindigkeit  $v_\phi$ : Für  $\bar{n}_2 > 0$  ist diese im Zentrum aufgrund der höheren Intensität ( $\Rightarrow$  größerer Brechungsindex) geringer. Die Folge ist eine Krümmung der Phasenflächen entlang des räumlichen Pulsverlaufs.



**Abbildung 2.24:** Wirkung der Selbstfokussierung in einem nichtlinearen Medium auf einen gaußförmigen Intensitätsverlauf. Entscheidend ist dabei die zunehmende Krümmung der Phasenflächen bei der Propagation zur rechten Seite hin (aus [44]).

Da der Wellenvektor  $\vec{k}$  stets senkrecht auf den Phasenflächen steht und gleichzeitig die Ausbreitungsrichtung der Wellen widerspiegelt, erhält man sozusagen eine Einschnürung des Strahlenbündels, also eine Fokussierung.

Die Selbstphasenmodulation resultiert aus der Zeitabhängigkeit der Intensität und somit des Brechungsindex  $n(t)$ . Dadurch ergibt sich eine ebenfalls zeitabhängige Momentanfrequenz  $\omega(t)$ , welche wiederum nichts anderes als die Zeitableitung der Phase ist. Summa summarum führt also die Zeitabhängigkeit der Intensität zu einer zeitlich veränderlichen Phase. So entstehen durch diese Selbstphasenmo-

dulation neue Frequenzkomponenten im Spektrum eines Laserpulses, was insgesamt einer spektralen Verbreiterung gleichkommt. Die neuen Komponenten sind nicht "synchronisiert" (in Phase), liegen aber innerhalb der Einhüllenden des Pulses [7][44].

Ein weiterer Effekt höherer Ordnung ist die sog. Selbstaufsteilung ("self-steepening") von Laserpulsen. Er resultiert aus der Tatsache, dass auch die Gruppengeschwindigkeit einer Intensitätsabhängigkeit unterliegt und ist speziell bei äußerst kurzen Pulsen von etwa 10 fs oder weniger von Bedeutung. So kann z.B. die hintere Flanke eines Pulses schneller sein als sein Zentrum und zu einem steileren Anstieg der "Rückseite" führen - der Effekt entspricht einer Art optischen Schockwelle [41].

### 2.4.3 Pulskompression durch Filamentation

Wie können die genannten Effekte nun eine zeitliche Kompression von Laserpulsen bewirken? Grundsätzlich existiert eine ganze Reihe von Methoden, um die gewünschte Wirkung zu erzielen:

Die wohl grundlegendste Technik ist es, die Pulsverbreiterung aufgrund der Gruppengeschwindigkeitsdispersion zu korrigieren (GVD-Kompensation) um letztlich einem fourierlimitierten Puls bzw. einer flachen spektralen Phase möglichst nahe zu kommen. In diesem Fall sind die Möglichkeiten aufgrund der Begrenzung der Bandbreite natürlich eingeschränkt, die Kompensation ist aber zur Erzeugung extrem kurzer Pulse unabdingbar und wird in Kapitel 3.1 etwas konkreter behandelt.

Die "eigentliche", nichtlineare Pulskompression beinhaltet vor allem ein Durchbrechen der Bandbreite-Begrenzung, üblicherweise mit Hilfe der Selbstphasenmodulation. Im Mittelpunkt steht dann zumeist das Zusammenspiel von SPM und GVD, da die spektrale Verbreiterung an sich noch nicht zu einer Pulsverkürzung, oftmals sogar eher zu einer größeren Pulsdauer führt. Die neu "erschaffenen" Frequenzkomponenten müssen in Phase gebracht werden,  $\varphi(\omega)$  also flach verlaufen, was durch die GVD-Kompensation ja möglich ist [45][7].

Wir kommen nun endgültig zum Filamentationsprozess, da dieser eines der Instrumente zur nichtlinearen Pulskompression darstellt. Der Begriff "Filamentation" bezeichnet eine Art "Selbst-Leitung" oder auch "Selbst-Kanalisation", welche ein hochintensiver Laserpuls in einem transparenten Medium (zumeist ein Gas) erfährt. Für diesen Mechanismus sind hauptsächlich zwei Effekte verantwortlich: die zuvor beschriebene Selbstfokussierung sowie, sozusagen als Gegenspieler, eine Defokussierung infolge der Ionisation des Mediums ( $\Rightarrow$  Plasmabildung) durch den Puls. Die Selbstfokussierung wirkt, wie der Name ja schon nahelegt, im Normalfall ( $\bar{n}_2 > 0$ ) als Sammellinse und lässt die Intensität des Pulses somit ansteigen. Bei einer ausreichend hohen Intensität, für Gase typischerweise ca.  $10^{13} \frac{W}{cm^2}$ , setzt dann die bereits ausführlich diskutierte Multiphotonen-Ionisation ein. Es entsteht so ein schwach ionisiertes Plasma<sup>3</sup>, genauer gesagt eine Art Plasma-Schlauch oder -kanal, entlang der Spur des Laserpulses, mit typischen Elektronendichten  $N_e$  von etwa  $10^{16} - 10^{17} cm^{-3}$ . Hierbei ist wieder zu beachten, dass ein Puls keine konstante Intensitätsverteilung aufweist, sodass die Ionisation primär im Kernbereich (höchste Intensität) des Pulses stattfindet. Das Plasma bewirkt insgesamt eine Reduzierung des Brechungsindex und führt so zu einer Defokussierung, die die Wirkung der Selbstfokussierung kom-

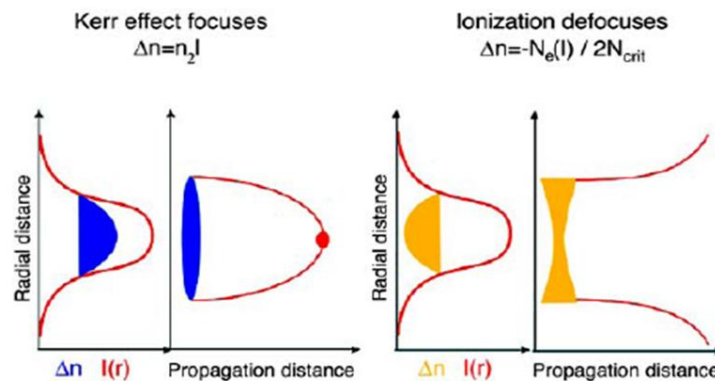
---

<sup>3</sup>Bei einer schwachen Ionisation ist die Elektronendichte  $N_e$  sehr viel kleiner als die neutrale Teilchendichte  $N_0$ .

pensiert. Für die Änderung  $\Delta n_P$  des Brechungsindex gilt:

$$\Delta n_P \approx -\frac{\omega_P^2}{2\omega^2} = -\frac{N_e(I)}{2N_K}.$$

$\omega_P$  ist die Plasma-Frequenz,  $N_e(I)$  steht für die intensitätsabhängige Dichte freier Elektronen.  $N_K$  ist die kritische Dichte, oberhalb derer das Plasma für Strahlung der Frequenz  $\omega$  undurchsichtig wird.



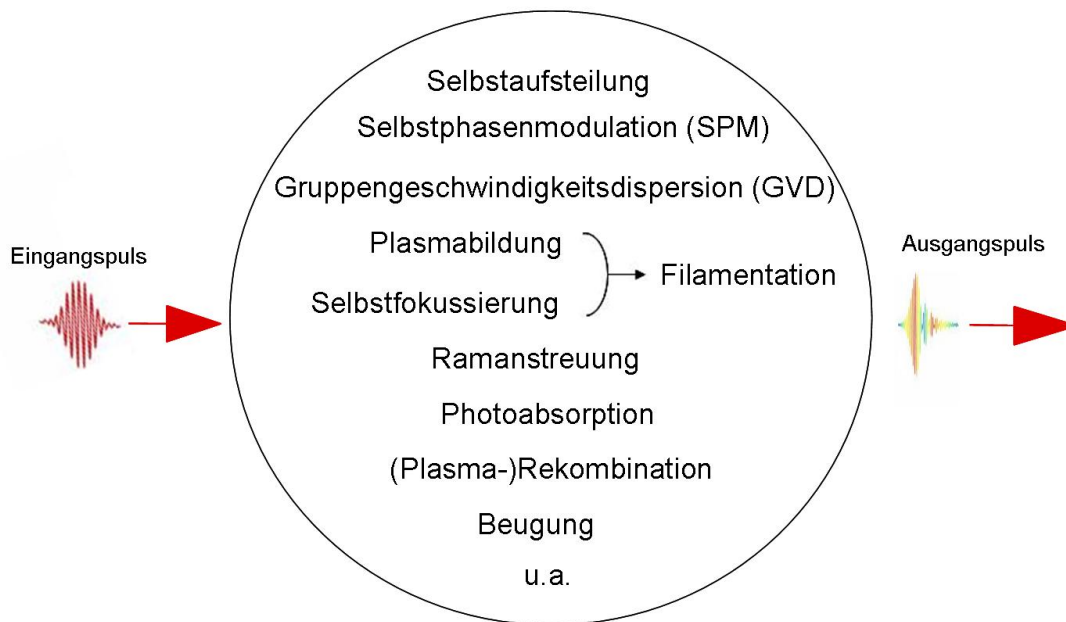
**Abbildung 2.25:** Die Wirkung der zwei für die Kanalisierung im wesentlichen verantwortlichen Prozesse. Links die Selbstfokussierung infolge des Kerr-Effekts, rechts die durch die Photoionisation verursachte Defokussierung (aus [46]).

In der Folge verharren die räumliche Breite wie auch die Intensität auf einem relativ konstanten Niveau. Der Begriff "Selbst-Leitung" steht also für eine Einschnürung der Pulse entlang ihrer Propagationsachse und über eine gewisse Strecke hinweg, als würden sie z.B. durch eine Glasfaser geführt. Mittels der beiden Formeln für die Änderung des Brechungsindex lässt sich ein ungefährender Wert für die kritische Intensität  $I_K$  angeben, ab der die Filamentation einsetzt und auf deren Wert die Intensität sich in etwa stabilisiert. Unter Vernachlässigung der Beugung und zusätzlicher nichtlinearer Effekte kann folgende einfache Beziehung aufgestellt werden:

$$\Delta n(Kerr) \approx \Delta n(Plasma) \iff \bar{n}_2 \cdot I \approx -\frac{N_e(I)}{2N_K}.$$

Für Luft als Medium ließ sich so ein Wert von  $I_K \approx 4 \cdot 10^{13} \frac{W}{cm^2}$  ermitteln, der auch durch andere Methoden bestätigt werden konnte [47].

Die räumliche Stabilität steht ganz im Gegensatz zur komplexen Dynamik in zeitlicher Hinsicht. Hier wirkt eine ganze Reihe von Effekten direkt oder indirekt auf die Pulsstruktur, die sich außerdem noch gegenseitig beeinflussen. Sie sorgen in Kombination für eine (Selbst-)Kompression der Pulse, die wichtigsten sind in Abbildung 2.26 aufgeführt.



**Abbildung 2.26:** Die wichtigsten der auf die zeitliche Pulsstruktur wirkenden Prozesse.

Besonders erwähnenswert ist die Auswirkung der Selbstphasenmodulation: sie nimmt mit der Propagationsdistanz und der Intensität zu und ermöglicht eine so starke spektrale Verbreiterung, dass sich beispielsweise im sichtbaren Bereich quasi ein Kontinuum bildet (Weißlichterzeugung oder "supercontinuum generation"), welches zudem bis ins Infrarote reicht. Durch das breite Spektrum sind natürlich zugleich sehr kurze Pulse möglich, andererseits werden aber auch die Folgen der Gruppengeschwindigkeitsdispersion massiv verstärkt [46][48]. Aber schon an diesem Punkt ist die Sache nicht ganz so einfach. Zugleich entsteht nämlich auch durch die Plasmabildung eine Modulation der Phase, da die Elektronendichte intensitätsabhängig und die Intensität wiederum zeitabhängig ist. Wie bei der Selbstphasenmodulation ist daher auch der Brechungsindex des Plasmas zeitabhängig und beeinflusst so die Phase bzw. die Momentanfrequenz [49].

Der wesentliche Vorteil dieser Kompressionsmethode drückt sich schon in den Worten "Selbst-Leitung" und "Selbst-Kompression" aus: es ist keine besondere optische Konstruktion zum Führen und Komprimieren eines Pulses notwendig [50]. Nebenbei bietet die Filamentation weitere Anwendungsmöglichkeiten wie etwa bei der Spektroskopie der Erdatmosphäre oder das Auslösen und Führen von Blitzen [51].



# Kapitel 3

## Experiment

Schau alle Wirkenskraft und  
Samen,  
Und tu nicht mehr in Worten  
kramen.

---

*(J.W. Goethe, Faust I)*

Wie bereits eingangs erwähnt, nahm diese Diplomarbeit nicht ganz den Verlauf, der zunächst vorgesehen war. Der ursprüngliche Plan sah eine pump-probe-Untersuchung an ausgerichteten Sauerstoff- und Stickstoff-Molekülen vor. Messtechnisch betrachtet wäre der Hauptgegenstand dieses hypothetischen Experiments die Bestimmung der Impulse von Elektronen und Ionen nach Ionisation der Moleküle durch hochintensive Laserpulse gewesen. Die hierfür angewendete Untersuchungsmethode wird als COLTRIMS bezeichnet, ein Akronym für "Cold Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy". Das kalte Target ist in unserem Fall ein Gas-Strahl bzw. -Jet aus  $O_2$  bzw.  $N_2$  innerhalb einer Hochvakuumkammer. Das pump-probe-Experiment hätte im konkreten Fall folgende Gestalt angenommen: Die Pulse (linear polarisiert) eines Titan-Saphir-Lasers werden in einem Interferometer (Mach-Zehnder-Anordnung) aufgesplittet. Ein Teil jedes Pulses wird mit abgeschwächter Intensität über eine feste Spiegelanordnung zur Vakuumkammer geschickt. Er dringt durch ein Fenster in die Kammer ein, wird durch einen fokussierenden Spiegel auf den Jet konzentriert und dient der Ausrichtung der Moleküle. Für den anderen Teil des Pulses werden Spiegel auf einem motorisierten Verschiebetisch ("delay-stage") platziert, wodurch eine Zeitverzögerung (delay) gegenüber dem anderen Teil des Pulses erreicht werden kann. Der verzögerte Puls nimmt dann hinter dem Ausgang des Interferometers den gleichen Weg in die Vakuumkammer wie der erste Puls. Die Abschwächung des ersten Pulses (pump-Puls) soll gewährleisten, dass möglichst wenige Moleküle in der Kammer ionisiert werden, wohingegen der verzögerte (probe-)Puls mit voller Intensität auf die Moleküle trifft und eine Ionisation auslösen kann. Die entstehenden Ionen und Elektronen trennt man durch ein elektrisches Feld voneinander und lenkt sie auf jeweils einen (für Ionen und Elektronen) positionssensitiven Detektor. Mit Hilfe des magnetischen Feldes eines Helmholtzspulen-Paares wird sichergestellt, dass möglichst alle Teilchen auch den entsprechenden Detektor erreichen. Die Richtung der Impulsvektoren erhält man bei bekannter Position der Reaktionszone (und unter Berücksichtigung der angelegten Felder) über den Aufschlagsort auf dem Detektor. Die Flugzeit der geladenen Teilchen in der Kammer (und somit auch der Impulsbetrag) kann durch ein externes Start-Signal und ein Stopp-Signal des Detektors (bei Auftreffen des Teilchens)

ermittelt werden.

Kommen wir nun zum eigentlichen Experiment: der **zeitlichen Kompression der Laserpulse**.

So komplex dieser Vorgang physikalisch im Detail auch ist, so vergleichsweise einfach gestaltet sich das Ganze in technischer Hinsicht. Zunächst werden die Pulse zu einer Teleskop-Anordnung zweier Linsen (Zerstreuungs- und Sammellinse) geschickt. Die Linsen sind auf einer Schiene montiert und entlang dieser absolut wie auch relativ zueinander verschiebbar - eine absolute Bewegung verschiebt den Brennpunkt, eine relative verändert die Brennweite des Systems. Hinter dieser Anordnung ist eine mit Argon gefüllte, röhrenförmige Kammer platziert, in die die Pulse axial fokussiert werden und in der sich das Filament ausbilden soll. Die genaue Konstruktion erfolgt auf zwei verschiedene Weisen und ist in Kapitel 3.3 erläutert. Hinter der "Filament-Kammer" werden mit Hilfe des sog. "FROG" die Pulse charakterisiert und insbesondere ihre zeitliche Länge ermittelt (siehe Kapitel 3.4).

### 3.1 Laser

Die Untersuchung extrem schneller Naturvorgänge, die innerhalb von Piko- oder gar Femtosekunden ablaufen, erfordert ein Messsystem mit entsprechend hoher zeitlicher Auflösung. Diese wird durch ultrakurze Laserpulse ermöglicht, die die Rolle eines Fotoblitzes mit äußerst kurzer Belichtungszeit annehmen. Will man die Dynamik eines Systems über eine gewisse Zeitspanne verfolgen, so kann hierfür eine Serie von Pulsen als eine Art Stroboskop-Licht dienen, das die Bewegung von sehr schnellen Objekten wie Molekülen festhalten oder gewissermaßen einfrieren kann und so die Verfolgung der Dynamik des Systems in einzelnen Schritten ermöglicht [52].

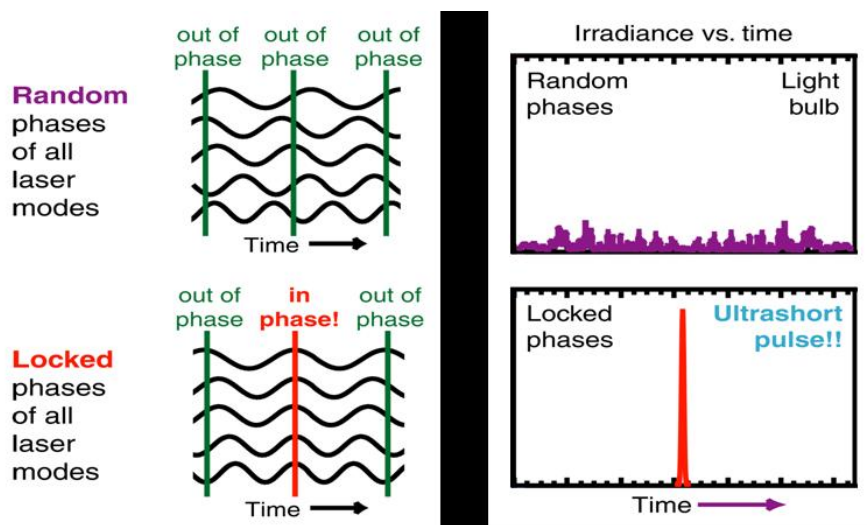
Gleichzeitig sind, nicht zuletzt für das Experiment in dieser Diplomarbeit, auch extrem hohe Intensitäten notwendig, sodass die Multiphotonen-Ionisation mit ausreichender Rate stattfinden kann. Die heutzutage möglichen Intensitäten übersteigen mithilfe spezieller Verstärkungsverfahren und Fokussierungsoptiken mittlerweile die Marke von  $10^{20} \frac{W}{cm^2}$ . Zum anschaulichen Vergleich sei erwähnt, dass diese Strahlung intensiver ist als das gesamte auf die Erde treffende Sonnenlicht, würde man es auf einen Stecknadelkopf konzentrieren [53]!

#### 3.1.1 Die Erzeugung kurzer Laserpulse

Wie aber können Laserpulse von solch kurzer Dauer und enormer Intensität generiert werden? Die wohl naheliegendste Methode ist eine Modulation des Pumpvorgangs bei einem kontinuierlichen (CW) Laser. Hierfür sind insbesondere Blitzlampen einsetzbar und man erreicht eine Pulsdauer von ca.  $10^{-6}$  s. Beim "Q-switching" verhindert ein Schalter im Resonator das "Lasing", bis die maximale Besetzungsinversion erreicht ist. Das folgende Umschalten bewirkt eine starke Intensitätserhöhung und ermöglicht Pulslängen der Größenordnung  $10^{-8}$  s [54].

Die bis heute wichtigste Technik ist aber wohl ohne Zweifel die sog. Modenkopplung ("mode-locking"). Das Ziel ist die Überlagerung vieler stehender Wellen bzw. Kopplung vieler Resonatormoden mit einer

festen Phasenbeziehung. Benötigt wird dabei ein breitbandiges Verstärkungsmedium, sodass in einer typischen Kavität mehr als 100.000 Moden existieren. Von zentraler Bedeutung ist die Tatsache, dass die feste Phasenbeziehung zwischen den Moden im Frequenzraum äquivalent ist zur "Wahl" eines Intensitätsmaximums (d.h. eines kurzen Pulses) in der Zeit. Besäßen alle Moden die gleiche Phase, so könnten sie alle in einem Zeitpunkt konstruktiv interferieren. Mathematisch betrachtet entspricht die inverse Fourier-Transformation einer unendlichen Reihe von  $\delta$ -Funktionen (mit konstantem Abstand und in Phase) im Frequenzraum einer unendlichen Serie von unendlich kurzen Pulsen in der Zeit, also ebenfalls  $\delta$ -Funktionen. In der Realität haben wir es mit einem Zug (zeitlich) äquidistanter Pulse zu tun, der einem Frequenzkamm mit fester Phasenbeziehung entspricht [52][54][41][42][7].



**Abbildung 3.1:** Zufällige vs. feste Phasenbeziehungen und die daraus resultierende Strahlungsform (aus [55]).

Die Modenkopplung lässt sich sowohl aktiv als auch passiv erreichen. Im aktiven Fall moduliert man die Verluste im Resonator periodisch mit einer Frequenz, die sich aus der inversen Umlaufzeit ergibt ( $\Rightarrow$  Amplitudenmodulation). Das Ganze lässt sich praktisch mit Hilfe elektro- oder akustooptischer Schalter realisieren. Wesentlich effektiver hingegen ist die passive Modenkopplung, da die Modulation der Umlaufverluste durch den Puls selbst erfolgt. Zum einen können dafür sog. sättigbare Absorber verwendet werden. Hierbei wird ein weiterer nichtlinearer Effekt ausgenutzt, bei dem die Absorption eines Mediums bei Erhöhung der Strahlungsintensität abnimmt bzw. eine schnelle Sättigung eintritt. Die Rückkehr in den Ausgangszustand (Relaxation) erfolgt langsamer, jedoch schneller als die Umlaufzeit im Resonator. Beim Auftreffen eines (noch nicht sehr kurzen) Laserpulses wird die ansteigende Pulsflanke stark absorbiert, bis eine Sättigung erreicht ist (bestimmt durch die Pulslänge); im Bereich des Intensitätsmaximums findet dann kaum noch Absorption statt.

Für die üblicherweise eingesetzten Farbstoff-Absorber ist die Relaxationszeit größer als die Pulsdauer, sodass der Puls-Schwanz nicht absorbiert werden kann. Aber auch das verstärkende Medium besitzt Sättigungseigenschaften: bei höheren Intensitäten reduziert sich die Besetzungsinversion und somit die Verstärkung. Folglich sättigt die hohe Intensität im Zentrum das Medium und der Schwanz wird



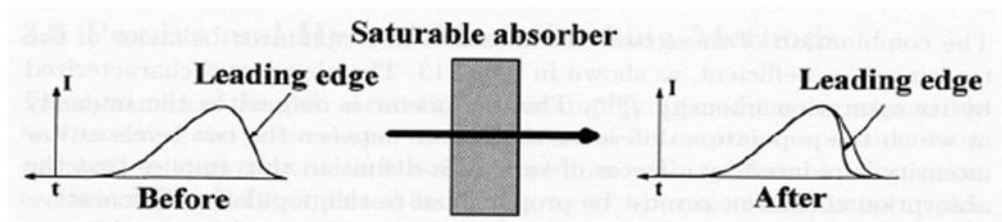


Abbildung 3.2: Wirkung eines sättigbaren Absorbers auf einen kurzen Laserpuls (aus [7]).

weniger verstärkt. Die Saturationsdynamik ist insgesamt jedoch weniger schnell als im Absorber. In der Summe der zwei Sättigungseffekte ist nur im zentralen Bereich des Pulses die Verstärkung größer als die Absorption ("Netto-Verstärkung"  $> 0$ ), ansonsten dominieren die Verluste (Abb. 3.3). Vielfache Durchläufe im Resonator bewirken so die zunehmende Verkürzung eines Pulses, die aber irgendwann an eine Grenze stößt, welche den Puls "selbstkonsistent" werden lässt (ändert die Form nicht mehr) [52][54][42][7].

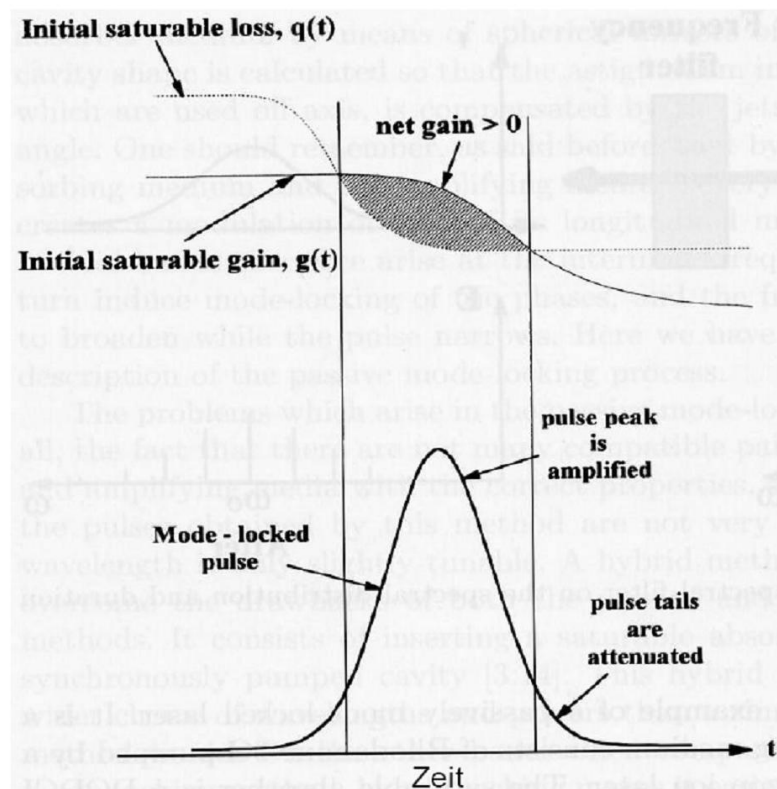


Abbildung 3.3: Verstärkung vs. Absorption bei sättigbaren Absorbern (aus [7]).

## 3.1.2 Das Laser-System am IKF

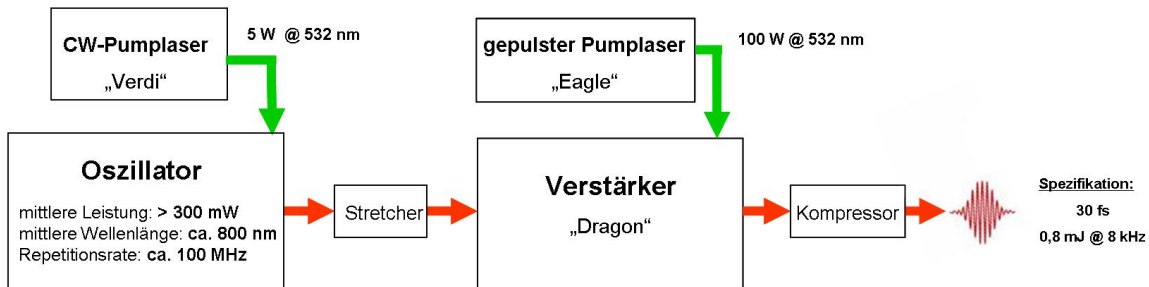


Abbildung 3.4: Schematischer Gesamtaufbau des eingesetzten Laser-Systems.

Die in diesem Experiment eingesetzte Laser-Apparatur (Abb. 3.4) bedient sich einer anderen Variante der Modenkopplung, die als "Kerr-Linsen-Modenkopplung" (KLM) oder "Selbst-Modenkopplung" bekannt ist. Das Lasermedium und Herzstück des Systems ist ein Titan-Saphir-Kristall (Ti:Sa), der ein besonders breites Emissionsspektrum bietet und im wesentlichen für die Modenkopplung verantwortlich ist. Ein solcher Kristall wird in unserem Fall sowohl für die eigentliche Erzeugung der ultrakurzen Pulse (im Oszillator) als auch für deren Verstärkung genutzt<sup>1</sup>. Die spektrale Breite ist, wie zuvor erläutert, die Voraussetzung für eine besonders kurze Pulslänge, welche in diesem Fall theoretisch einige Femtosekunden (Bandbreite-Begrenzung) betragen kann.

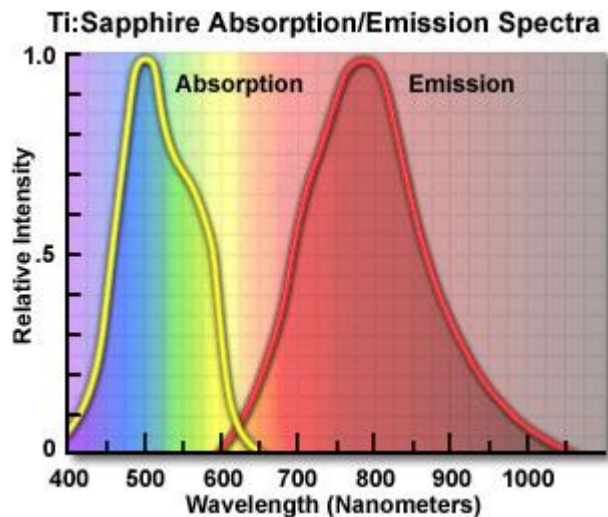


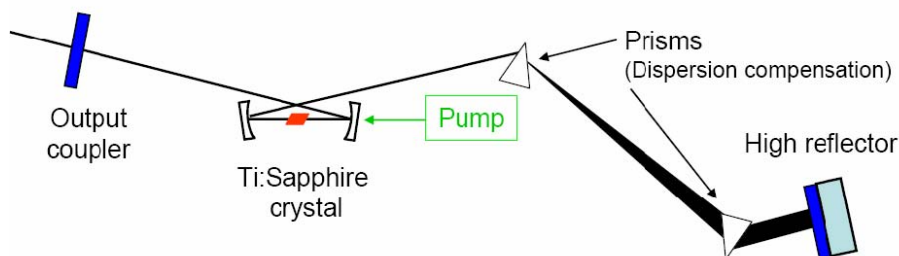
Abbildung 3.5: Absorptions- und Emissionsspektrum von Ti:Saphir (aus [56]).

Bei Ti:Saphir handelt es sich um eine mit Titan-Ionen dotierte, monokristalline  $Al_2O_3$ -Matrix. Es besitzt neben der großen Bandbreite weitere vorteilhafte Eigenschaften wie beispielsweise eine sehr hohe

<sup>1</sup>Das Verstärker-Medium muss bei ultrakurzen Laserpulsen allgemein eine vergleichbar hohe Bandbreite besitzen wie das Oszillator-Medium [7].

Wärmeleitfähigkeit, welche unerwünschte thermische Effekte mildert und so hohe Pumpleistungen erlaubt [45][53][42].

Beginnen wir unsere Betrachtungen aber am Ursprung. Jeder Laser benötigt eine Energiequelle, um die Atome des Lasermediums in den gewünschten Zustand zu "pumpen". In unserem Fall ist es ein kontinuierlicher Laser, der dem Oszillator als Pumplaser dient. Es handelt sich um einen frequenzverdoppelten Neodym-YAG-Laser, Modell "Verdi", der Firma "Coherent". Er emittiert grünes Licht mit 532 nm Wellenlänge und einer Leistung von ca. 5 Watt. Sein Strahl wird in eine Kavität fokussiert (genauer: auf den Ti:Sa-Kristall), die gemäß Abb. 3.6 aufgebaut ist und in der gut  $10^6$  Moden existieren können.



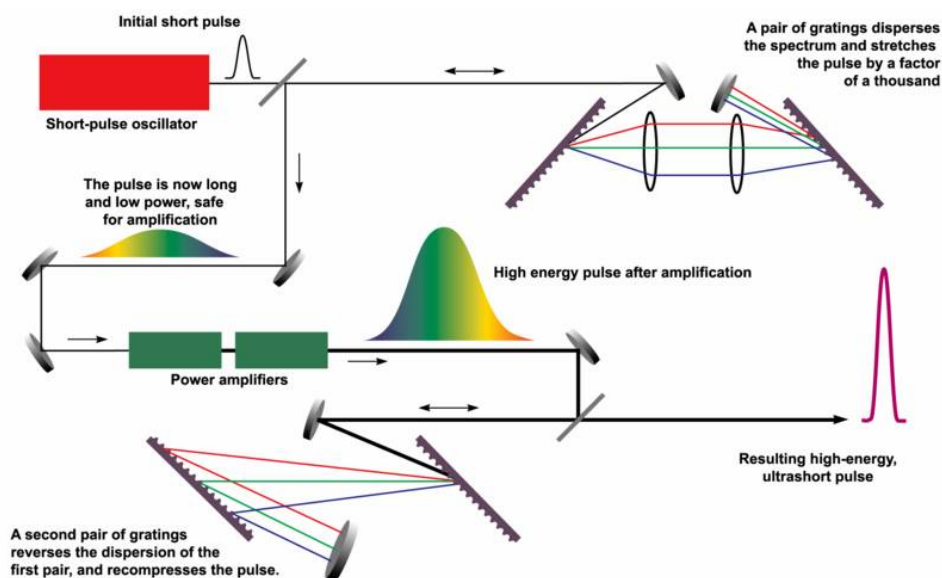
**Abbildung 3.6:** Konfiguration der sog. "X-Kavität" des Ti:Sa-Oszillators (aus [42]).

Ein elementarer Bestandteil des Oszillators sind, neben dem Kristall und den obligatorischen Spiegeln, zwei Prismen (inklusive eines hochreflektierenden Planspiegels), die der GVD-Kompensation dienen. Nur so kann sichergestellt werden, dass entstehende Pulse nicht bereits innerhalb des Oszillators zeitlich auseinanderlaufen. Ti:Saphir verursacht im für uns relevanten Wellenlängenbereich eine positive Gruppengeschwindigkeitsdispersion, die durch eine entsprechend negative GVD des Prismenpaares egalierbar ist. Die Strahlung erfährt durch ein Prisma bekanntermaßen eine Winkeldispersion und so eine relative Phasenverschiebung der einzelnen Frequenzkomponenten. Die resultierende GVD ist dabei stets kleiner Null. Infolge der räumlichen Dispersion nehmen die Komponenten zwar unterschiedliche geometrische Wege, nach Hin- und Rückweg durch die beiden Prismen werden sie aber so kombiniert, dass sich nur die zeitliche Lage zueinander ändert. Praktisch kann der GVD-Wert durch das Material der Prismen und ihren relativen Abstand beeinflusst werden [54][57].

Die zentrale Frage mit Blick auf den Oszillator bzw. den Kristall ist jetzt natürlich, wie die kurzen Pulse überhaupt zustande kommen. Durch den Pump-Prozess kann der Kristall ein großes Spektrum an Frequenzen emittieren und ermöglicht so die oben genannte, große Zahl von Moden, die sich in der Kavität überlagern. Ohne Modenkopplung sind die Phasenbeziehungen jedoch willkürlich und die Intensität räumlich wie zeitlich beliebig verteilt. Die Initialzündung ist entweder eine (infolge einer zufälligen konstruktiven Überlagerung) irgendwann von selbst entstehende, pulsähnliche Verteilung (praktisch eine kleine Spitze innerhalb des Rauschens) oder eine mechanische Beeinflussung von außen. Letzteres kann ein einfaches Antippen eines Kavitätsspiegels sein, dass wegen der anschließenden, schlagartigen Änderung der Phasenverhältnisse eine pulsähnliche Intensitätsverteilung induzieren

kann<sup>2</sup>. Nun kommt die Selbstfokussierung ins Spiel, die den Oszillator dauerhaft in einen gepulsten Zustand zwingen kann. Wegen der höheren Intensität der pulsartigen Struktur wird diese im Kristall stärker fokussiert als CW-Strahlung. Durch die Selbstfokussierung des "Quasi-Pulses" verbessert sich für diesen der Überlapp mit dem in Kavität fokussierten Pumplaser-Strahl und so der Netto-Gewinn an Strahlungsenergie (KLM mit "weicher Apertur"). Der Effekt verstärkt sich wegen der so immer weiter wachsenden Intensität mit jedem Durchgang durch den Kristall [58][52]. Da die Flanken des Pulses eine geringere Momentanintensität<sup>3</sup> als das Zentrum besitzen, werden sie weniger stark fokussiert und erfahren somit auch eine geringere Verstärkung. Jeder Durchgang führt somit zu einer Aufsteilung der Flanken und zur Verkürzung des Pulses; der Prozess ist also im Endeffekt der sättigbaren Absorption und Verstärkung (siehe Kap. 3.1.1) sehr ähnlich [54].

Die Verstärkung der durch den Oszillator generierten Pulse erfolgt nach dem Prinzip der "chirped-pulse amplification" (CPA). Verstärkung bedeutet in diesem Fall, dass die Pulsenergie von einigen Nanojoule auf gut  $10^{-3}$  J erhöht wird, wobei der genaue Wert von der Repetitionsrate abhängt.



**Abbildung 3.7:** Das Prinzip der CPA im Überblick (aus [59]).

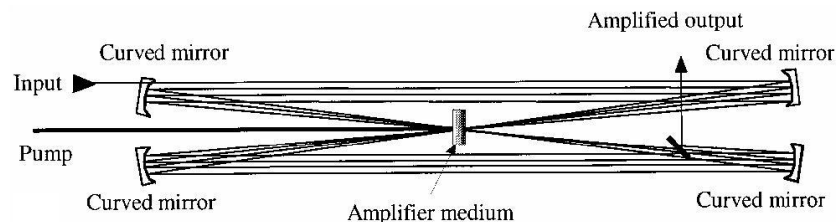
Ziel der CPA ist es, die Energie der Pulse zu erhöhen, dabei aber gleichzeitig besonders hohe Strahlungsleistungen beim Verstärkungsprozess selbst zu vermeiden um das hierbei benutzte Medium nicht zu beschädigen. Man verlängert zunächst den Puls in der Zeit durch eine "künstliche" Dispersion, die jedoch nach der Verstärkung wieder rückgängig gemacht werden kann. Dieses "Auseinanderziehen" erfolgt mit dem sog. "Stretcher", welcher in unserem Fall ein Paar von Beugungsgittern ist. Die Gitter bewirken wie die Prismen eine räumliche Aufspaltung der Frequenzkomponenten, ihre Funktion basiert allerdings auf der Frequenzabhängigkeit der Beugungsbedingung. Der "Kompressor" wird

<sup>2</sup>Bei ersterer Möglichkeit kann das Warten sehr kurz, aber ebenso (inakzeptabel) lange dauern. Auf der anderen Seite garantiert auch das Antippen eines Spiegels nicht automatisch das Einsetzen des modelocking, die Wahrscheinlichkeit ist allerdings höher.

<sup>3</sup>Man kann im Falle des Kerr-Effekts von einer praktisch instantan eintretenden Wirkung ausgehen [54].

ebenfalls von einem Gitter-Paar gebildet und rekonprimiert den Puls nach der Verstärkung [53]. Ein Hauptproblem der CPA liegt allerdings in der Schwierigkeit, dabei die originale Pulsdauer wiederzugewinnen [7].

Die Erhöhung der Pulsenergie erfolgt mit Hilfe eines Multipass-Verstärkers vom Modell "Dragon" der Firma "KMLabs". Der Verstärkungsprozess erfordert ebenfalls einen Pumplaser, im Gegensatz zum Oszillator allerdings einen gepulsten. Zum Einsatz kam hier das Modell "Eagle" von "Quantronix", das 100 Watt Leistung bei 532 nm Wellenlänge liefert. Wie im Falle des "Verdi" ist Neodym-YAG das Lasermedium und die Strahlung wird frequenzverdoppelt; den gepulsten Zustand erreicht man durch das an anderer Stelle schon erwähnte Q-switching (Kap. 3.1.1). Der Pumplaser sorgt für die nötige Besetzungsinversion; die Verstärkung der Pulse findet dann infolge induzierter Emission statt.



**Abbildung 3.8:** Prinzipieller Aufbau eines Multipass-Verstärkers (aus [53]).

Bei einem Multipass-Verstärker durchquert, wie der Name schon andeutet, der Puls mehrfach das Verstärkermedium, jedoch ohne dass ein(e) Kavität/Resonator im klassischen Sinne verwendet wird (Passagen sind stattdessen geometrisch separiert). Die Energie erhöht sich zwar bei jeder Passage etwa um einen Faktor 10, auf der anderen Seite findet dieser Vorgang aber deutlich seltener statt als in einer Resonator-Anordnung [53]. Grob gesagt ist die Zahl möglicher Passagen primär von der Komplexität des Designs abhängig [7].

Ein generelles Problem bei der Verstärkung ultrakurzer Pulse ist das Auftreten von verstärkter spontaner Emission (ASE). Da die Pulse des Pumplasers erheblich länger sind als die Erholzeit des Verstärkermediums, ist die erzielte Besetzungsinversion auch nach der eigentlichen Verstärkung noch existent. Dadurch können spontane Emissionen ebenfalls verstärkt werden und einen (hochenergetischen) Untergrund bilden. Dabei reduziert sich der Energiegewinn der ultrakurzen Pulse und das Signal-Rausch-Verhältnis wird schlechter. Mit einer Multipass-Anordnung lässt sich die Effizienz allerdings erhöhen und ASE unterdrücken. Die Zeit zwischen zwei Passagen des Mediums sollte etwa gleich dessen Erholzeit sein [41].

Die Länge der Pulse nach dem CPA-Vorgang beträgt laut Herstellerspezifikationen gut 30 fs, während ihre Energie an die Repetitionsrate des Verstärkers gekoppelt ist. Der "Dragon" lässt sich mit Raten von 1 bis 20 kHz betreiben, wodurch sich Pulsenergien zwischen ungefähr 0,25 und 2,5 mJ ergeben [60]. In unserem Fall wurde das System mit 8 kHz gefahren und die entsprechende Pulsenergie betrug (im Idealfall) rund 800  $\mu$ J.

## 3.2 Interferometer und delay-stage

Der pump-probe-Aufbau besteht im wesentlichen aus einem Mach-Zehnder-Interferometer zur Aufspaltung der Laserpulse, der delay-stage zur relativen Verzögerung der Teilpulse sowie einem Michelson-Interferometer zur präzisen Bestimmung der Verschiebung der delay-stage (zusätzlich zu und unabhängig von der intern gemessenen Position des Verschiebetisches selbst).

Die Pulse werden zunächst mit einem Strahlteiler bezüglich der Intensität etwa im Verhältnis 50:50 aufgespalten. Der Strahlteiler (Hersteller "Layertec") besteht aus Quarzglas (engl.: fused silica) plus Beschichtung und ist für Wellenlängen von 500 bis 1100 nm optimiert. Relevant ist hierbei vor allem eine möglichst geringe Dispersion, genauer gesagt Gruppengeschwindigkeitsdispersion, welche in diesem Fall  $<20 \text{ fs}^2/\text{mm}$  beträgt. Zwar lässt sich die Dispersion im Allgemeinen kompensieren, was aber bei immer größeren Frequenz-Bandbreiten bzw. kürzeren Pulsen zunehmend schwieriger wird, sodass eine niedrige Dispersion definitiv von Vorteil ist.

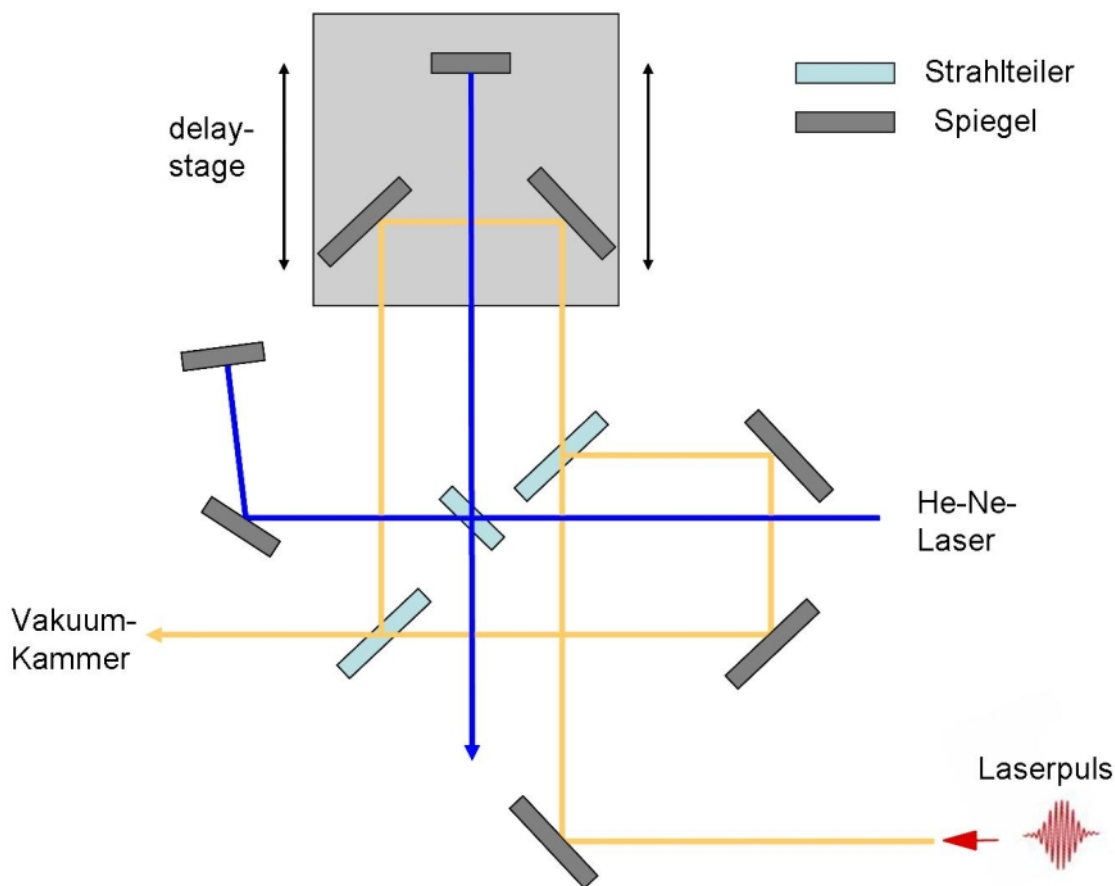
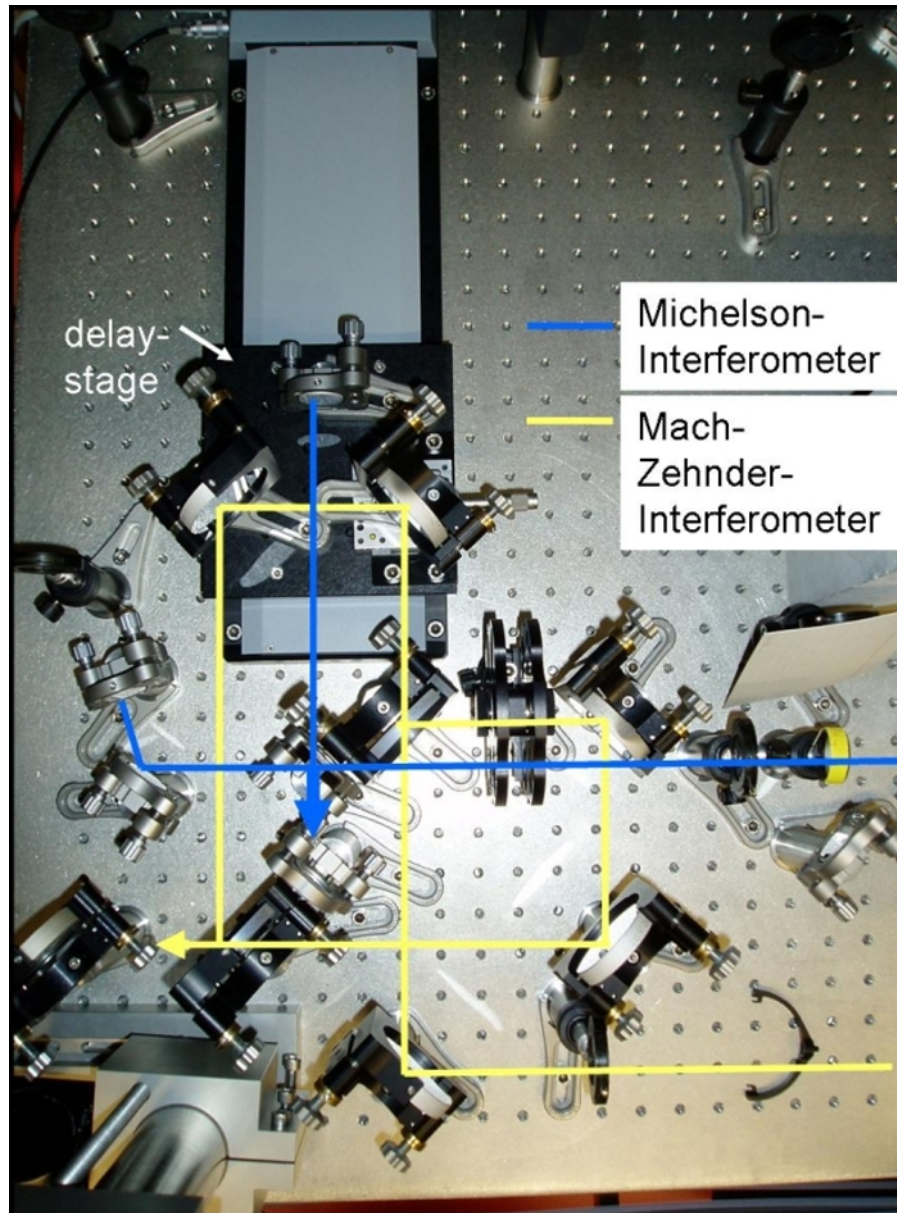


Abbildung 3.9: Schema des pump-probe-Aufbaus.





**Abbildung 3.10:** Der pump-probe-Aufbau als Fotografie. Da das Experiment nicht weitergeführt wurde, ist hier weder eine Photodiode noch ein Element zum Abschwächen des pump-Pulses integriert.

Der reflektierte Anteil der Pulse wird über zwei Spiegel zu einem zweiten Strahlteiler gelenkt, der baugleich zum ersten ist. Wiederum wird ein Teil reflektiert, während der andere transmittiert wird und zur Experimentierkammer läuft. Entscheidend ist der Anteil, der durch den ersten Strahlteiler transmittiert wird. Zwar wird dieser Teil des Pulses ebenfalls durch zwei Spiegel zum zweiten Strahlteiler geschickt, allerdings sind die Spiegel auf der delay-stage angebracht, sodass die Entfernung zum zweiten Strahlteiler veränderbar ist. Die delay-stage ist ein sog. Lineartisch Modell "M-521.VD" der Firma PI (Physik Instrumente). Er wird von einem Gleichstrommotor angetrieben und ist über eine Strecke von 204 mm verschiebbar - die Weglängendifferenz kann somit im Vergleich zum festen Arm des Interferometers mehr als 40 cm betragen (hin und zurück), entsprechend einem Laufzeitunterschied von  $\approx 10^{-9}$  s. Die Verschiebung kann laut Hersteller mit einem Inkrement von  $0,1 \mu\text{m}$  geschehen, das Ganze mit einer Genauigkeit von  $2 \mu\text{m}$  bei 50 mm Verschiebestrecke. Der Motor ist mit einem Antriebscontroller Typ "C-862 Mercury" (ebenfalls von PI) verbunden, welcher wiederum an einen PC angeschlossen wird (serielle Schnittstelle). Zwar stand eine mitgelieferte Software zur Steuerung des Tisches zur Verfügung, für das pump-probe-Experiment war allerdings eine "Eigenkonstruktion" notwendig. Mit Hilfe des "ROOT"-Systems (entwickelt am CERN) wurde daher ein entsprechendes Interface programmiert, mit dem sich Geschwindigkeit, Beschleunigung und gewünschte Verschiebung auswählen und die aktuelle Position anzeigen lassen. Hiermit kann zum einen der Tisch bequemer und zweckorientierter gesteuert werden, zum anderen kann so die Position des Tisches während des Experimentes ständig mitgeschrieben und mit der restlichen Datenaufnahme verknüpft werden.

Das Michelson-Interferometer kann für eine extrem genaue Messung relativer Distanzen, in diesem Fall die Verschiebung der delay-stage, eingesetzt werden. Im Gegensatz zu den Positionsinformationen des Tisches/Controllers selbst kann diese Messung kleinste Änderungen der Weglänge durch thermische Verformungen der Bauelemente registrieren (insbesondere bei kontinuierlichem Verschieben des Tisches) und dient somit als unabhängiger Maßstab. Als Strahlungsquelle kommt ein konventioneller Helium-Neon-Laser ( $\lambda = 632,8 \text{ nm}$ ) zum Einsatz. Das (Interferenz-)Signal am Ausgang des Interferometers kann mittels einer Photodiode detektiert werden; die von ihr gemessene Intensität ist abhängig vom Wegunterschied  $\Delta s$  zwischen den zwei miteinander interferierenden Teilstrahlen. Bei Bewegung der delay-stage bzw. des Spiegels wird  $\Delta s$  natürlich zeitabhängig und die Intensität nimmt einen Verlauf der Form  $\cos^2$  [61]. Mit einem kleinen, selbst geschriebenen C++-Programm lässt sich die Zahl  $N$  der Interferenzmaxima im Signal der Photodiode zählen. Eine Verschiebung des beweglichen Spiegels um eine Strecke von  $\lambda/2$  entspricht der Wanderung von einem zum nächsten Maximum. Die gesamte Wegänderung erhält man dann aus folgender Beziehung:  $\Delta s = N \cdot \frac{\lambda}{2}$  [43].

## 3.3 Aufbauten zur Pulskompression

Die Filamentation und Verkürzung der Laserpulse geschieht in zwei verschiedenen Experimenten: Zum einen wird ein Filament in einer gasgefüllten Kammer erzeugt und eine Charakterisierung der austretenden Pulse in Abhängigkeit von der Position innerhalb des Filaments gemessen. Zum zweiten wird in der Kammer ein (veränderbarer) Druckgradient aufgebaut und dessen Kompressionswirkung auf die Laserpulse untersucht.

Der konkrete Aufbau gestaltet sich vergleichsweise einfach und besteht aus folgenden Hauptkompo-



nenten:

- Eine mit Argon gefüllte, röhrenförmige Kammer, in der sich das Filament ausbilden kann ("Filament-Kammer").
- Verbunden mit der Kammer ein System zum Abpumpen und Einlassen der Luft respektive des Argons.
- Eine Linsenkombination zur axialen Fokussierung der Laserpulse in die Kammer.
- Das FROG-System zur Charakterisierung der Pulse nach dem Austritt.

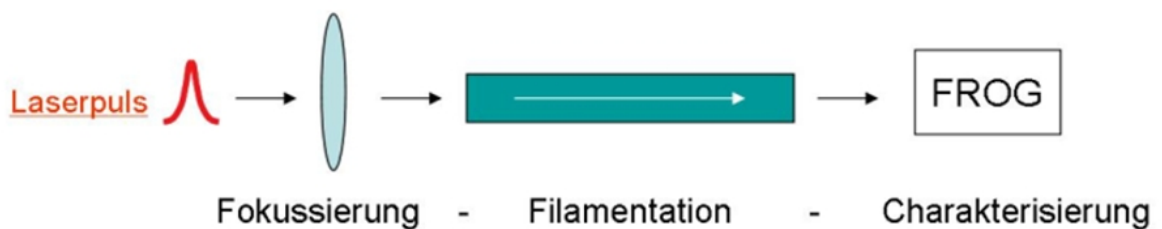


Abbildung 3.11: Die einzelnen Schritte des Experiments.

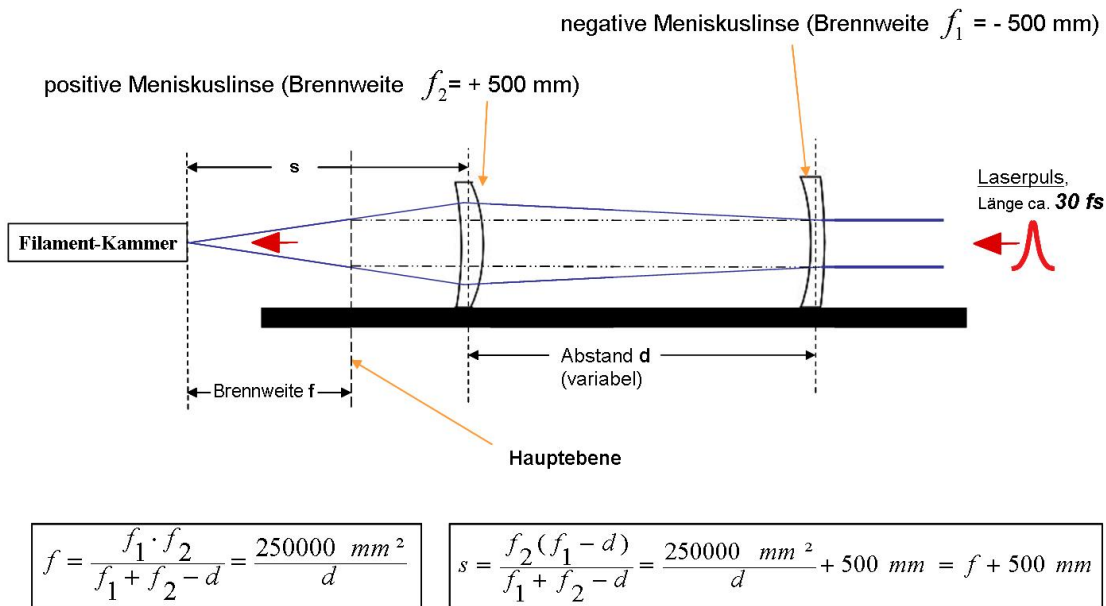
Zunächst erfolgt die **Fokussierung** durch eine flexible Kombination von Zerstreungs- und Sammellinse, mit der sich die (Gesamt-)Brennweite  $f$  über einen großen Bereich verändern lässt. Die Flexibilität wird dadurch erreicht, dass beide Linsen verschiebbar auf einer 200 cm langen Schiene befestigt sind, sodass sich die gewünschte Brennweite einfach durch Wahl des Abstands  $d$  zwischen den Linsen ergibt. Der minimale Abstand beträgt konstruktionsbedingt etwa 3 cm, was aber aufgrund der für sehr geringe Abstände ohnehin sehr hohen Brennweiten (8 m und mehr) nicht weiter stört. Die Größe  $f$  erhält man aus folgender Beziehung [62]:

$$f = \frac{f_1 \cdot f_2}{f_1 + f_2 - d}$$

Dabei sind  $f_1$  und  $f_2$  die Brennweiten der zwei einzelnen Linsen. Im konkreten Fall kamen Meniskuslinsen aus BK7-Glas mit +500 bzw. -500 mm Brennweite zum Einsatz, wodurch sich obige Formel für die Gesamtbrennweite stark vereinfacht (siehe Abbildung 3.12). Parallel dazu kann über eine Gewindestange eine starre Verbindung (d.h.  $d = \text{const.}$ ) zwischen den zwei Linsen hergestellt werden; durch Verschiebung des Linsensystems als Ganzes verschiebt sich somit auch der Fokus innerhalb der Filament-Kammer.

Zusammengefasst erfüllt die Optik folgende Funktionen:

- Die Laserpulse können so stark gebündelt werden, dass die für die Entstehung des Filaments notwendige, kritische Intensität erreicht wird.
- Durch Verschieben der gesamten Linsenkombination lässt sich die Lage des Brennpunkts in der Kammer festlegen.
- Mit Änderung des Abstands  $d$  kann die Brennweite und somit der Fokus-Durchmesser bzw. die Intensität reguliert werden.



**Abbildung 3.12:** Das Linsensystem samt der relevanten Größen und Formeln zu ihrer Berechnung.

Die **Filamentation** findet innerhalb eines länglichen, hohlen Kreiszyinders statt, der im wesentlichen aus Glasrohren und KF-(40)-Vakuumteilen zusammengesetzt ist. An den Seiten befinden sich spezielle Fenster für einen möglichst unbeeinflussten (Dispersion!) Ein- und Austritt der Laserpulse. Sie bestehen aus Quarzglas mit einer Dicke von 0,25 mm und stehen zur Vermeidung von Rückreflexionen nicht senkrecht zur Ausbreitungsrichtung.

Die Raumluft wird aus dieser sog. Filament-Kammer abgepumpt und Argon eingelassen. Wie erwähnt wurden zwei verschiedene Experimente durchgeführt, für die dementsprechend die Kammer in zwei Varianten aufzubauen war:

1. Kurz vor dem Austrittsfenster wird ein speziell angefertigtes KF-Bauteil eingesetzt, das im Gegensatz zu den normalen Verbindungsstücken nur einen Innendurchmesser von 1 mm besitzt. Auf der Austrittsseite ist ein Vakuum(pumpen)-System angeschlossen, auf der Eintrittsseite erfolgt der Argon-Zufluss. Es entsteht so quasi eine Zweiteilung der Kammer: in einer Hälfte befindet sich Argon mit einem Druck der Größenordnung 1 bar (genauer Wert variabel), in der anderen entsteht ein Vakuum von grob einigen  $10^{-3}$  bar. Natürlich findet trotz der nun sehr schmalen Öffnung noch ein gewisser Gasdurchfluss statt, er kann aber durch ein kurzes Röhrchen auf der Vakuumseite (siehe Abbildung 3.13) reduziert werden und das Vakuum etwas verbessern.

Zweck des Ganzen ist, dass die Laserpulse zwar durch die Öffnung bis zum Austrittsfenster gelangen, das Filament sich aber beim Übergang in das Vakuum sozusagen auflöst, da die nicht-lineare Wechselwirkung des Laserpulses mit dem Medium näherungsweise beendet wird (das Bauteil wird daher im folgenden als "Stopper" bezeichnet). Dies wiederum reduziert die hohe

Intensität der Pulse, die innerhalb des Filaments einen Durchmesser von nur rund  $10^{-4}$  m besitzen, und verhindert so eine Zerstörung des Austrittsfensters.

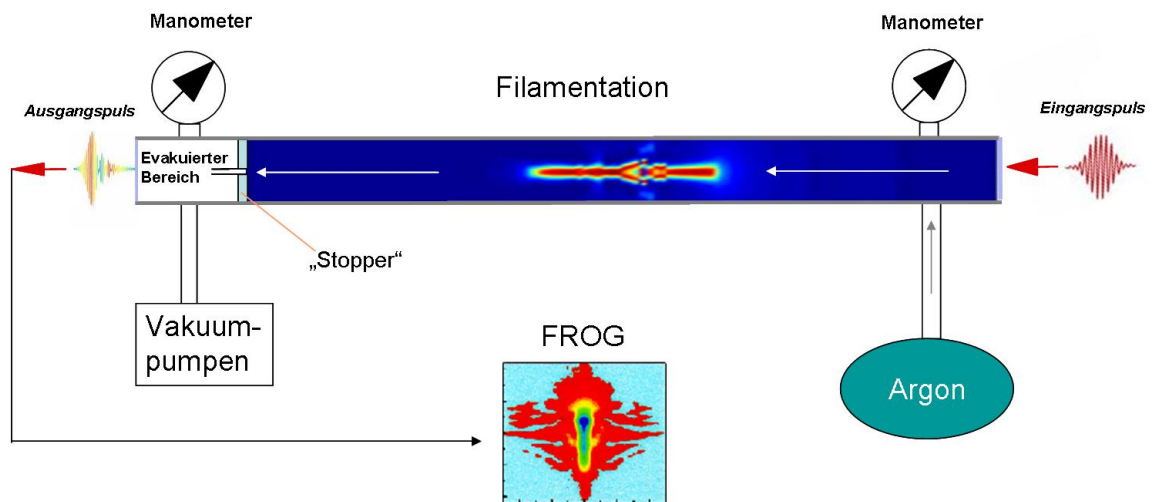


Abbildung 3.13: Schema der Filament-Kammer mit Stopper.

2. Der Stopper wird durch ein normales Verbindungsstück ersetzt. Zum Aufbau eines Druckgradienten wird das Argon nun in der Mitte der Kammer zugeführt und zur Rechten wie zur Linken abgepumpt. Im Zentrum befindet sich eine kreuzförmige Konstruktion, bei der oben ein Manometer und unten das Argon angeschlossen ist. An den beiden Seiten befestigte Edelstahlrohre (mit einem wesentlich geringeren Durchmesser als die KF-40-Teile) verbinden dieses Bauteil mit dem Rest der Kammer. Wichtig ist dabei nun, dass beide Rohre ein- und ausfahrbar sind und man somit nicht nur einen festen Druckgradienten erhält, sondern diesen auch variieren kann.

Das Vakuumsystem dient zum einen natürlich dem Abpumpen von Luft *aus* der und dem Zuführen von Argon *in* die Filament-Kammer. Zum anderen soll im ersten Experiment hinter dem Stopper ein Vakuum entstehen und aufrechterhalten werden, während das Argon wie erwähnt vor dem Stopper eingelassen wird. Im zweiten Experiment baut sich durch das Abpumpen auf beiden Seiten ein Druckgradient auf, dessen Maximum im Zentrum der Kammer liegt. Trotz des vergleichsweise schwachen Vakuums (Grobvakuum) würde die Druckdifferenz zwischen dem evakuierten Inneren der Kammer und dem normalen Luftdruck außerhalb eine Gefahr für die sehr dünnen Fenster darstellen. Daher werden während des Abpumpvorgangs zylinderförmige, mit dem Vakuumsystem verbundene Kappen über die beiden Fenster gestülpt, sodass das Vakuum nicht nur in der Kammer, sondern auch zwischen Fenster und Kappe entsteht. Die Kappen können dann wieder entfernt werden, wenn durch das eingelassene Argon der große Druckunterschied wieder verschwindet.

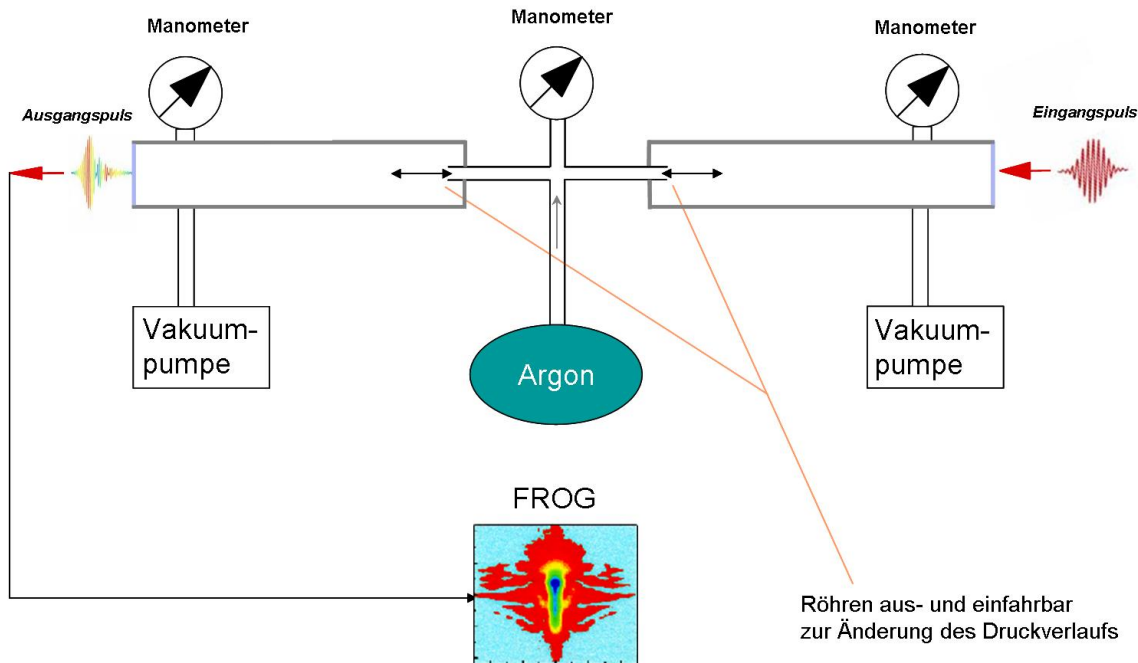


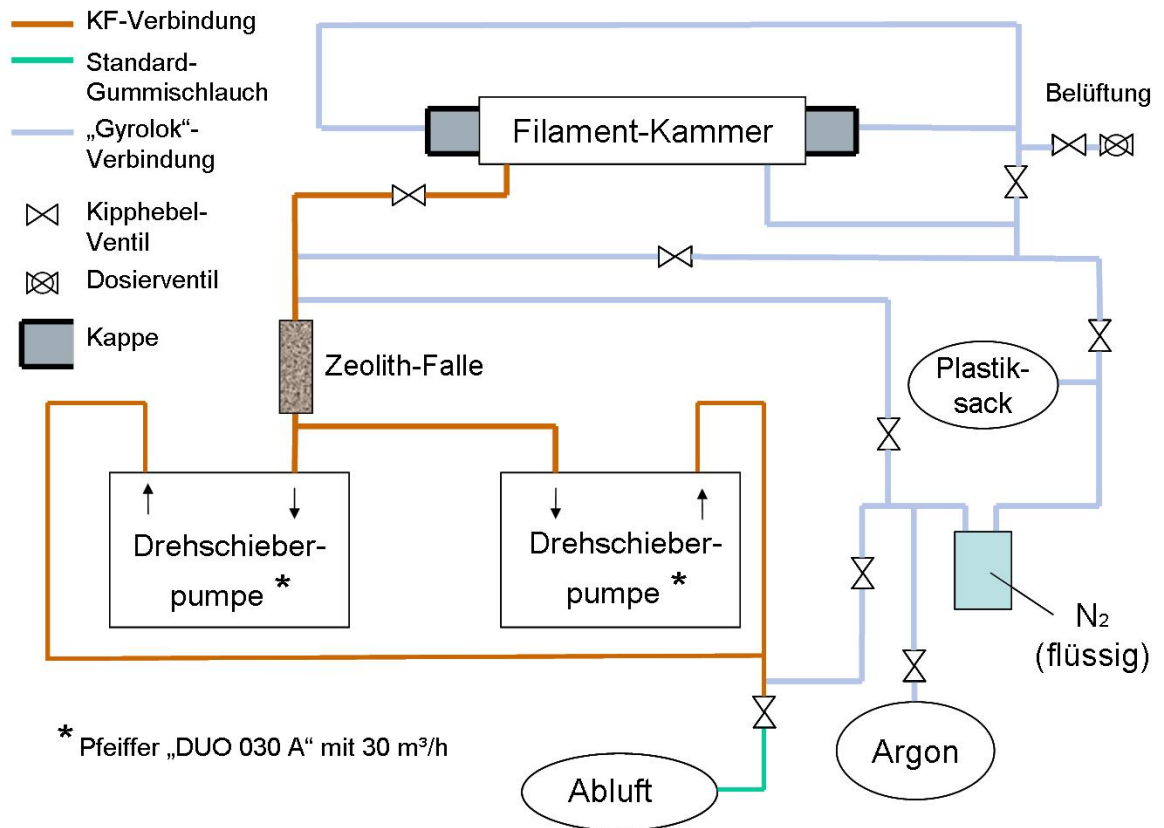
Abbildung 3.14: Die Kammer zum Aufbau eines Druckgradienten.

Zur **Charakterisierung** der komprimierten Pulse benutzt man die als FROG bekannte Messmethode, welche im folgenden Kapitel genauer beleuchtet wird.

## 3.4 Charakterisierung von Laserpulsen mit der FROG-Methode

Die genaue Charakterisierung eines Laserpulses, insbesondere die Bestimmung seiner zeitlichen Länge, erweist sich als absolut nichttriviales Problem. Da nämlich zur Messung eines Ereignisses in der Zeit generell ein noch kürzeres Ereignis vonnöten ist, ultrakurze Laserpulse jedoch die kürzesten je von Menschen künstlich geschaffenen Ereignisse darstellen, stellt sich natürlich die Frage nach einem geeigneten Mechanismus zur Pulslängen-Bestimmung. Aber auch andere Eigenschaften sind durchaus von Interesse. Beispielsweise lassen sich so theoretische Modelle zur Pulsformung überprüfen oder man kann ersehen, welche Effekte die Länge von Pulsen limitieren. Außerdem können unterschiedliche Pulsstrukturen den Verlauf von Experimenten wesentlich beeinflussen, sodass detailliertere Kenntnisse hierbei eine bessere Vorhersage ermöglichen.

Welche Charakteristika des Pulses sind nun von Bedeutung und welche Informationen werden benötigt? Generell ist der zeitliche Verlauf des Betrags des elektrischen Feldes,  $E(t)$ , die wichtigste Größe,

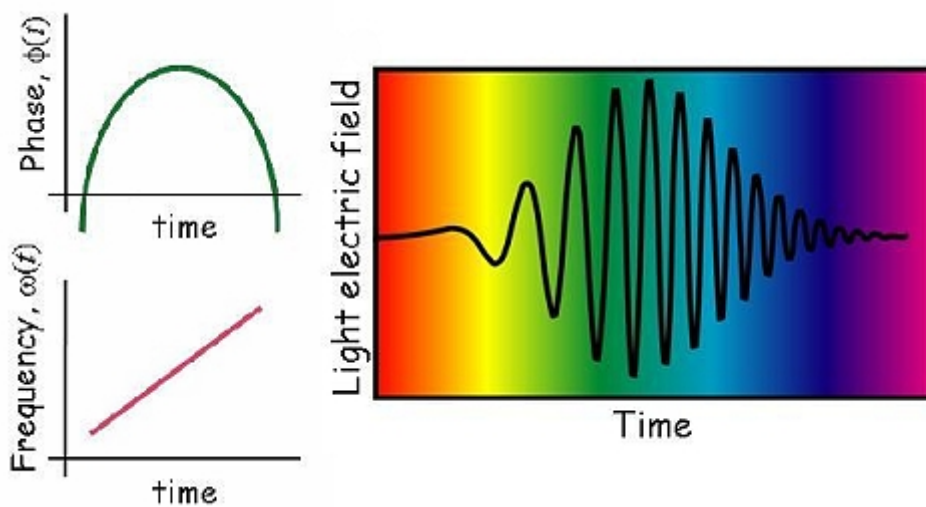


**Abbildung 3.15:** Filament-Kammer mit angeschlossenem Vakuum-System. Durch die Zeolith-Falle lässt sich ein guter Teil des von den Pumpen ausgestoßenen Öls einfangen, welches andernfalls in die Verbindungsschläuche zur Filament-Kammer hin gelangen würde. Der Gasfluss durch den Stopper und das anschließende Abpumpen bedeuten einen hohen Verbrauch an Argon, weswegen ein Recycling-System aufgebaut wurde. Dabei dient ein simpler Plastiksack als Druckausgleich-Behältnis, während mit Hilfe des flüssigen Stickstoffs Verunreinigungen ausgefroren werden sollen.

wobei man der Einfachheit halber von einer linearen Polarisation ausgehen sollte. Wie in Kapitel 2.4 bereits erwähnt, nimmt die Zeitabhängigkeit folgende allgemeine Form an:

$$E(t) = \text{Re}[\sqrt{I(t)} \cdot \exp(i(\omega_0 t - \phi(t)))].$$

Dabei sind  $I(t)$  und  $\phi(t)$  die zeitabhängige Intensität bzw. Phase und  $\omega_0$  eine Trägerfrequenz.  $\phi(t)$  bestimmt die Momentanfrequenz:  $\omega(t) = \omega_0 - \frac{d\phi}{dt}$ . Bei einem quadratischen Verlauf der Phase erhält man beispielweise eine lineare Frequenzänderung, einen sog. linearen "chirp" (das englische Wort für "zwitschern", als Analogie zu den Geräuschen von Vögeln); höhere Ordnungen führen zu einem nicht-linearen chirp.



**Abbildung 3.16:** Ein positiv linear "gechirpter" Puls (Frequenz steigt mit der Zeit linear an) (aus [63]).

Im Frequenzbereich nimmt das Feld des Pulses folgende Gestalt an:

$$\tilde{E}(\omega) = \sqrt{\tilde{I}(\omega - \omega_0)} \cdot \exp(i\tilde{\phi}(\omega - \omega_0)).$$

$\tilde{I}(\omega - \omega_0)$  ist einfach das Spektrum des Pulses und  $\tilde{\phi}(\omega - \omega_0)$  die spektrale Phase.

Zur Bestimmung von  $E(t)$  (oder auch  $\tilde{E}(\omega)$ ) mit beliebig kompliziertem Verlauf müssen also Intensität und Phase bzw. ihre fourier-transformierten Äquivalente gemessen werden. Mit Spektrometern lässt sich natürlich das Spektrum messen, nicht jedoch die spektrale Phase. Bei Messungen in der Zeit stehen wir generell vor dem eingangs erwähnten Problem der mangelnden Auflösung. Zur Abbildung des Intensitätsverlaufs  $I(t)$  wurde lange der sog. Autokorrelator eingesetzt, bei dem das kürzeste verfügbare Ereignis, nämlich der Puls selbst, zur Messung genutzt wird. Hierbei splittet man den Puls in zwei Teile und überlagert diese anschließend mit variabler relativer Verzögerung räumlich in einem nichtlinearen optischen Medium. Dieses Medium ist üblicherweise ein nichtlinearer Kristall zur Erzeugung zweiter Harmonischer (SHG-Kristall), der für den Autokorrelator ein Signal folgender Art erzeugt:

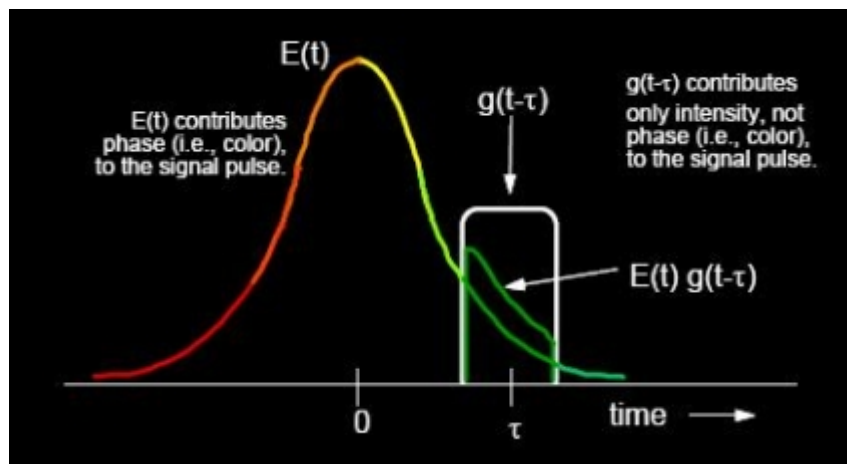
$$A(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} I(t)I(t - \tau)dt,$$

wobei  $\tau$  die Zeitverzögerung darstellt. Leider ergibt sich hieraus nur eine Art "verschmierte" Version von  $I(t)$ , bei der nicht selten Teile der Pulsform stark unterdrückt werden. Darüber hinaus muss allein schon zur Bestimmung der Pulslänge eine Annahme über die ungefähre Form des Pulses gemacht werden, woraus sich natürlich ein erhebliches Potential für Ungenauigkeiten ergibt.

Eine der Autokorrelation deutlich überlegene Messmethode stellt das sog. "frequency-resolved-optical-gating" (FROG) dar. Verblüffenderweise ist FROG experimentell im Grunde nichts anderes als eine Kombination der zwei erwähnten Methoden Autokorrelation und Spektrometrie. Dennoch ist diese sozusagen spektral aufgelöste Autokorrelation erheblich besser in der Lage, nicht nur die zeitliche Länge zu ermitteln, sondern auch die gesamte Pulsform zu charakterisieren. Wie ist dies möglich? Kurz gesagt misst FROG das Spektrogramm eines Pulses, also den zeitlichen Verlauf seines Spektrums oder anders gesagt das Spektrum von  $E$  zu allen Zeiten. Mathematisch stellt sich dies allgemein folgendermaßen dar:

$$S(\omega, \tau) = \left| \int_{-\infty}^{\infty} E(t)g(t-\tau)\exp(-i\omega t)dt \right|^2.$$

$\tau$  ist hierbei wie im Falle des normalen Autokorrelators eine variable Zeitverzögerung und  $g(t-\tau)$  eine Torfunktion. Letztere entspricht dem zuvor bereits gesuchten Ereignis, dass der Messung des Pulses dienen soll. Wiederum bleibt einem nichts anderes übrig, als einen "Klon" des Pulses selbst dazu zu benutzen.

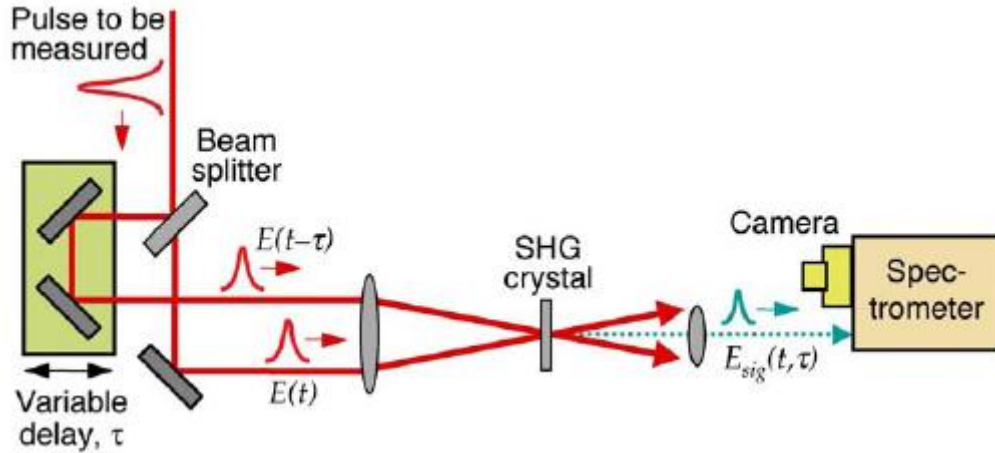


**Abbildung 3.17:** Die Torfunktion selektiert einen Teil von  $E(t)$ , dessen Spektrum dann gemessen wird. Dies geschieht über die gesamte Pulsform  $E(t)$  hinweg und für alle Werte  $\tau$  (wodurch die Position des Tores bestimmt wird) (aus [64]).

Die Überlagerung geschieht auch hier in einem nichtlinearen optischen Medium, welches in diesem Experiment ein SHG-Kristall ist. Je nach ausgenutztem nichtlinearem Effekt ergeben sich eine Reihe unterschiedlicher Geometrien; die Betrachtungen sollen sich im Folgenden aber auf die SHG-Geometrie gemäß Abbildung 3.18 beschränken. In diesem Fall besitzt das Spektrogramm folgende Form (graphisch als "FROG-Spur" bezeichnet):

$$I_{FROG}^{SHG}(\omega, \tau) = \left| \int_{-\infty}^{\infty} E(t)E(t-\tau)\exp(-i\omega t)dt \right|^2.$$





**Abbildung 3.18:** Experimenteller Aufbau einer FROG-Messung in der "SHG"-Geometrie (second harmonic generation) (aus [64]).

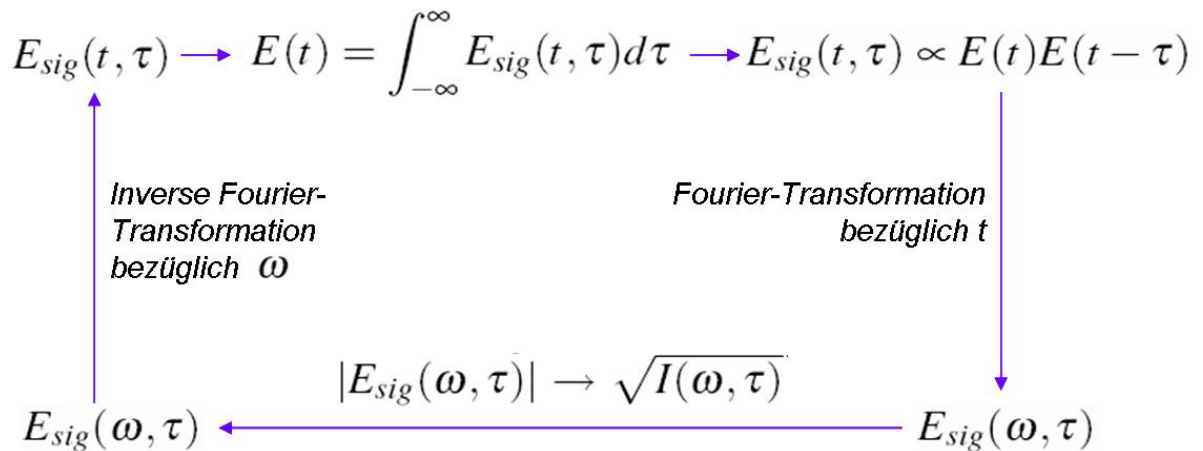
Wie lässt sich nun aber die Pulsform  $E(t)$  bestimmen? Im Falle der SHG-Geometrie erhält man aus dem Kristall einen Signalpuls mit einem Feld  $E_{sig}(t, \tau) \propto E(t)E(t - \tau)$ . Nun sei  $E_{sig}(t, \tau)$  die Fourier-Transformierte einer neuen Größe  $\hat{E}_{sig}(t, \Omega)$  bezüglich  $\tau$ . Diese wiederum liefert für  $\Omega$  gerade das gesuchte Feld  $E(t)$ :  $E(t) \propto \hat{E}_{sig}(t, \Omega = 0)$ . So ergibt sich für das Spektrogramm folgende Formulierung:

$$I_{FROG}^{SHG}(\omega, \tau) = \left| \int_{-\infty}^{\infty} \hat{E}_{sig}(t, \Omega) \exp(-i\omega t - i\Omega\tau) dt d\Omega \right|^2.$$

Eine (eindeutige) Lösung für  $\hat{E}_{sig}(t, \Omega)$  lässt sich dann finden, wenn über diese Größe gewisse Zusatzinformationen verfügbar sind. Der einfachste Weg erfolgt über einen iterativen Algorithmus, bei dem das Signalfeld zwischen Zeit- und Frequenzbereich vor und zurück fourier-transformiert wird. Die nötigen Informationen sind zum einen die generelle Form, die das Signalfeld aufweisen muss:  $E_{sig}(t, \tau) \propto E(t)E(t - \tau)$ . Zum anderen kann der Betrag von  $E_{sig}(\omega, \tau)$  durch die Wurzel aus der gemessenen Intensität (Spektrogramm) ersetzt werden:  $|E_{sig}(\omega, \tau)| \rightarrow \sqrt{I(\omega, \tau)}$ .

Wie bereits erwähnt existieren mehrere Variationen zur Messung des Pulssignals. Jede Anordnung produziert eine andere FROG-Spur und besitzt eine andere Empfindlichkeit hinsichtlich der Pulsenergie. Gemeinsam ist aber allen die äußerst hohe zeitliche Auflösung und Genauigkeit (keine Näherungen). Im Falle des SHG-FROG ist die Empfindlichkeit der wohl größte Vorteil. Er resultiert einfach aus der Tatsache, dass hierbei eine Nichtlinearität 2.Ordnung ( $\chi^{(2)}$ ) genutzt wird, während es in anderen Fällen die 3.Ordnung ist (z.B. für die dritte Harmonische), welche bei gegebener Pulsenergie ein schwächeres Signal liefert. Nachteilig ist hingegen die Symmetrie in der Zeit, die das Spektrogramm aufweist. Sie führt zu einem zweideutigen Ergebnis, da die Pulsform  $E(t)$  in diesem Fall die gleiche Spur liefert wie ihre Zeitumkehr  $E(-t)$ . Allerdings gibt es mehrere Methoden zur Beseitigung dieses Problems, sodass die Leistungsfähigkeit des SHG-FROG nur unwesentlich beeinträchtigt ist [63][64][65][66]. Abschließend sollten noch einige Worte zu einem zentralen Aspekt des FROG, der Zeitauflösung, verloren werden: Im Grunde bleibt es dabei, dass kein ausreichend kurzes Ereignis als "Messinstrument"





**Abbildung 3.19:** Schema des Algorithmus zur Bestimmung von Intensität und Phase eines Pulses.

verfügbar ist. Folgendes ist in diesem Zusammenhang festzuhalten:

- Prinzipiell kann die Verzögerung  $\tau$  der Pulse gegeneinander (bei der Autokorrelation) in Schritten von ca.  $10^{-17} s$  variiert werden. In der Praxis misst man die Spektren von N Autokorrelationsignalen, erhält also N Datenpunkte; N ist dabei z.B. 128 oder 256<sup>4</sup>. Messtechnisch betrachtet ist es dann natürlich einfach diese Zahl, die die Zeitauflösung bestimmt.
- Die Unschärferelation zwischen Zeit und Frequenz diktiert die Verhältnisse dadurch, dass die Zeitauflösung nicht zu hoch (entsprechend einer extrem schmalen Torfunktion bzw. einem extrem kurzen Puls) sein darf, da sonst Frequenz-/Phaseninformationen verloren gehen. Im Extremfall einer  $\delta$ -Funktion als Torfunktion ( $g(t-\tau)=\delta(t-\tau)$ ) bekäme man so ein komplett frequenzunabhängiges Spektrogramm. Ergo ist ein Ereignis kürzer als der Puls nicht nur nicht verfügbar, sondern auch nicht wünschenswert. Stattdessen ist es ein geeigneter Kompromiss, eine Zeit- und Frequenzauflösung in Größenordnung des Pulses selbst zur Messung zu benutzen, was bei FROG ja auch geschieht [64].
- Und dennoch ist die Zeitauflösung praktisch unendlich hoch! Zwar benutzt man für die Verzögerung  $\tau$  Inkremente, die etwa der Pulslänge entsprechen, jedoch werden die Kurzzeit-Informationen erst bei der Bestimmung von  $E(t)$  mit Hilfe der Fourier-Transformationen gewonnen. Das Prinzip entspricht dabei einer sog. Dekonvolution (= Entfaltung, die Umkehrung der mathematischen Faltung) wie sie beispielsweise bei der Schärfung von Fotografien zum Einsatz kommt. Diese liefert zunächst (scheinbar) nicht vorhandene Informationen, welche jenseits der Auflösung des

<sup>4</sup>Jedes einzelne Spektrum sollte ebenfalls N Datenpunkte liefern, sodass man letztlich eine FROG-Spur von beispielsweise  $128 \times 128$  Datenpunkten erhält. Unterscheiden sich beide Zahlen, so würden im Rahmen der Fourier-Transformation Informationen verloren gehen.

### 3.4 Charakterisierung von Laserpulsen mit der FROG-Methode

---

Messgeräts liegen. Im Falle der Fotografien also Details, die zuvor nicht erkennbar waren, und in unserem Fall Zeit-Informationen über Pulsstrukturen, die kürzer als die Pulslänge sind [64][65].



# Kapitel 4

## Ergebnisse

Wir sind zugleich Zuschauer und Mitspieler im großen Drama der Natur.

---

*(Niels Bohr)*

Der Verlauf der Messungen entsprach leider wiederum nicht ganz den Planungen. So musste aus Zeitmangel infolge erneuter Wartezeiten, insbesondere für die Benutzung des Laser-Systems, vor allem der zweite Teil des Experiments (Kammer mit Druckgradient) letztlich gestrichen werden. Stattdessen wurden einige alternative Untersuchungen durchgeführt, bei denen neben der FROG-Apparatur auch ein konventionelles Spektrometer (CCD-Spektrometer "SM242" des Herstellers "Spectral Products") benutzt wurde. Zudem kam in einigen Messungen einfache Luft anstatt des Argons in der Filamentkammer zum Einsatz.

Im Verlauf der Experimente offenbarten sich z.T. einige technische Schwierigkeiten, speziell bezüglich der Vakuum-Komponenten; zudem konnten einige (in Kapitel 3.3 gemachte) Annahmen nicht bestätigt werden. Auf beides soll in Kapitel 5 kurz eingegangen werden.

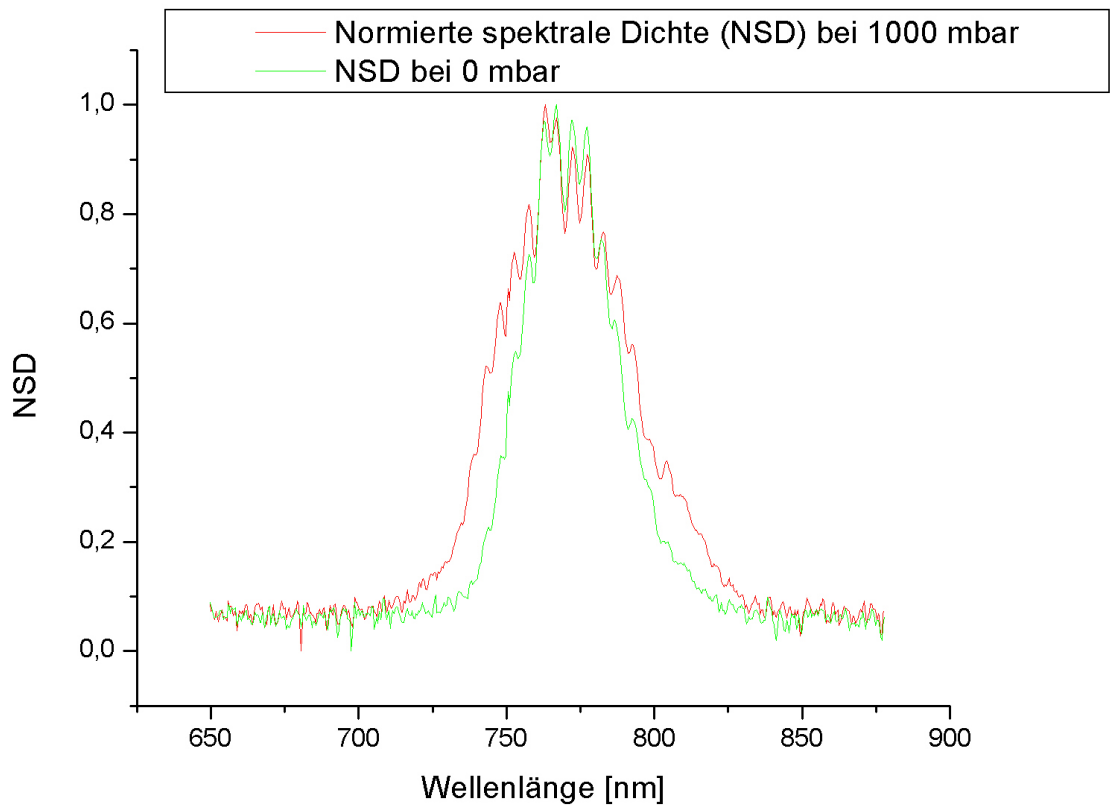
Für alle Messungen waren die zwei Linsen auf einen relativen Abstand von ca. 25 cm eingestellt, was eine Brennweite von gut 1 m ergibt. Die kritische Intensität sollte in der unmittelbaren Umgebung des Brennpunktes erreicht sein.

### 4.1 Spektrum in Argon bei verschiedenen Drücken

Im ersten Teil wurde die Kammer komplett mit Argon gefüllt und der "Stopper" ausgebaut. Gemessen wurde das Spektrum des Pulses bei unterschiedlichen Gasdrücken. Da die Manometer nur über einen einfachen Zeiger und eine grobe Unterteilung verfügten, muss man eine Ablesungs-ungenauigkeit von mindestens 10 mbar annehmen, was aber andererseits für die hier gemachten Untersuchungen keine bedeutende Rolle spielt.

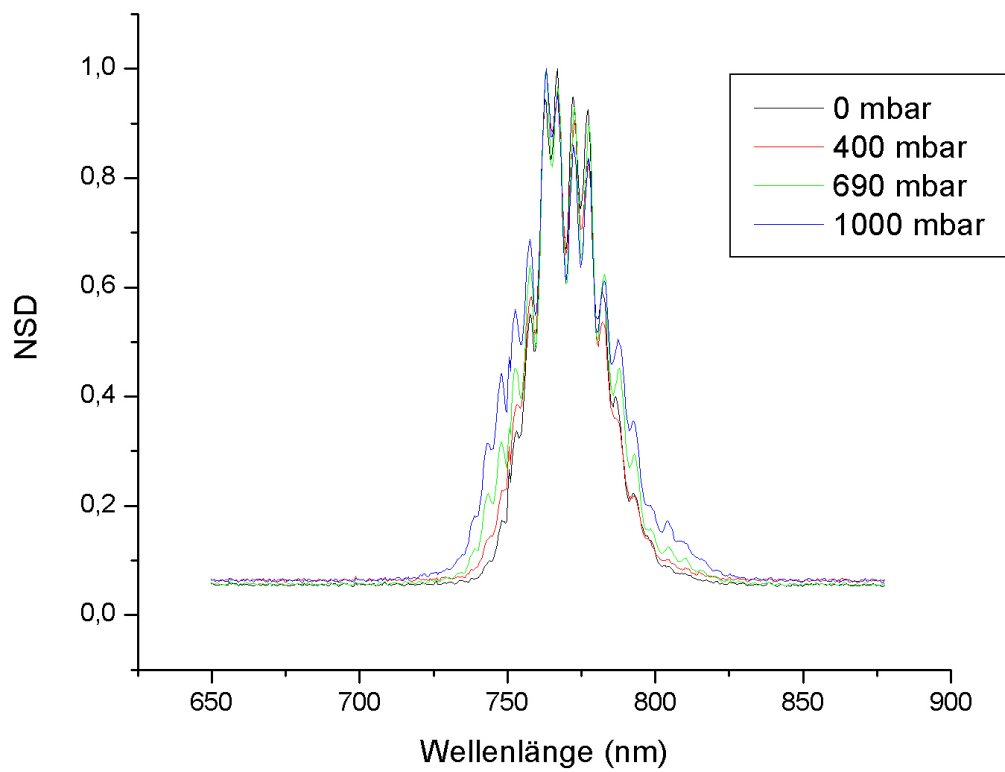
Die mittlere Ausgangsleistung des Lasers betrug etwa 5 Watt, was einer Pulsenergie von gut 630  $\mu\text{J}$  entspricht.

Dargestellt ist die spektrale Dichte (wird häufig auch als spektrale Intensität bezeichnet), zum besseren Vergleich auf 1 normiert, als Funktion der Wellenlänge; die Strahlung wurde (als Streulicht) durch das oben erwähnte Spektrometer detektiert (das FROG-System war zu dieser Zeit noch nicht vollständig funktionsbereit).



**Abbildung 4.1:** Ein direkter Vergleich der Kurven bei Drücken von 0 bzw. 1000 mbar zeigt unmittelbar eine deutliche spektrale Verbreiterung.

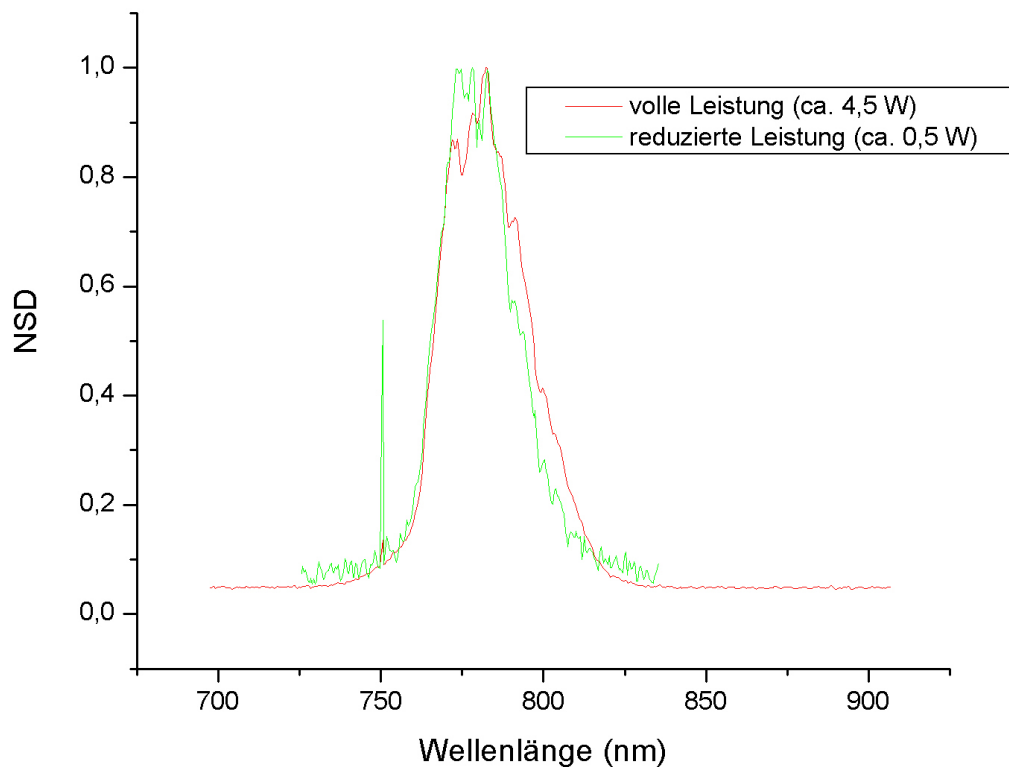
#### 4.1 Spektrum in Argon bei verschiedenen Drücken



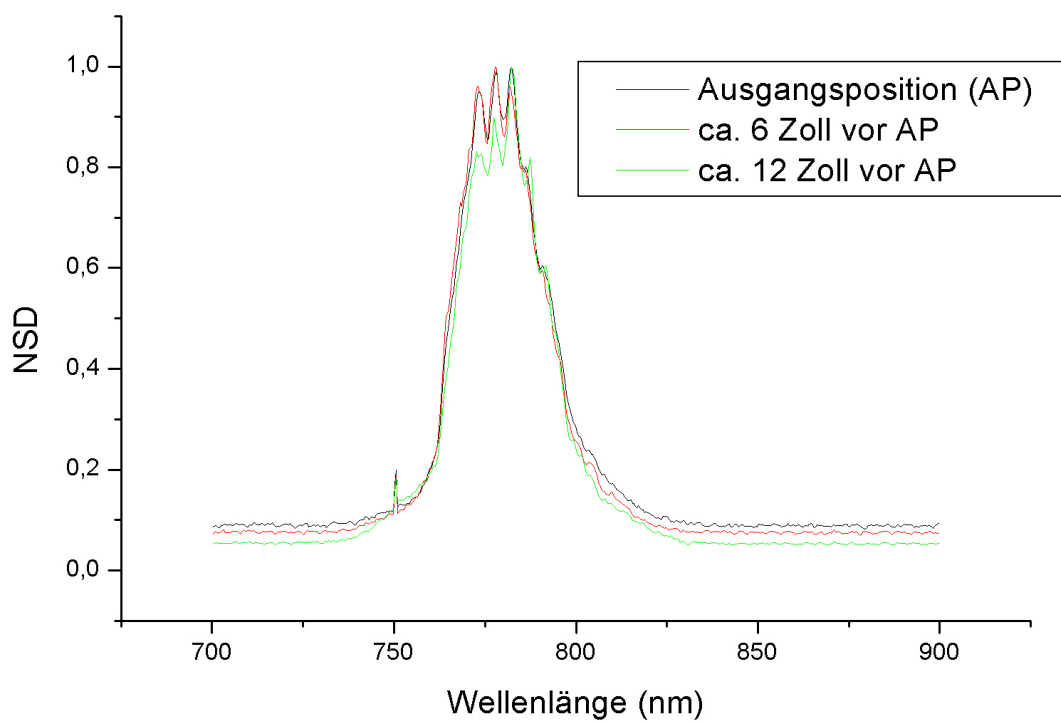
**Abbildung 4.2:** Spektrum in Argon: Durch die Einbeziehung einiger Zwischenwerte ist eine zunehmende Verbreiterung mit steigendem Druck zu erkennen.

## 4.2 Messungen mit Luft

Für die Untersuchungen an Luft kam wiederum nur das Spektrometer zum Einsatz. Der Laser lieferte zu Beginn ca. 4,5 W mittlerer Strahlungsleistung (entsprechend 560  $\mu\text{J}$ ), die bis zum Ende aber auf über 6 W (750  $\mu\text{J}$ ) anwuchs. Für die Evakuierung auf der Ausgangsseite der Kammer wurde nun auch der Stopper benutzt.

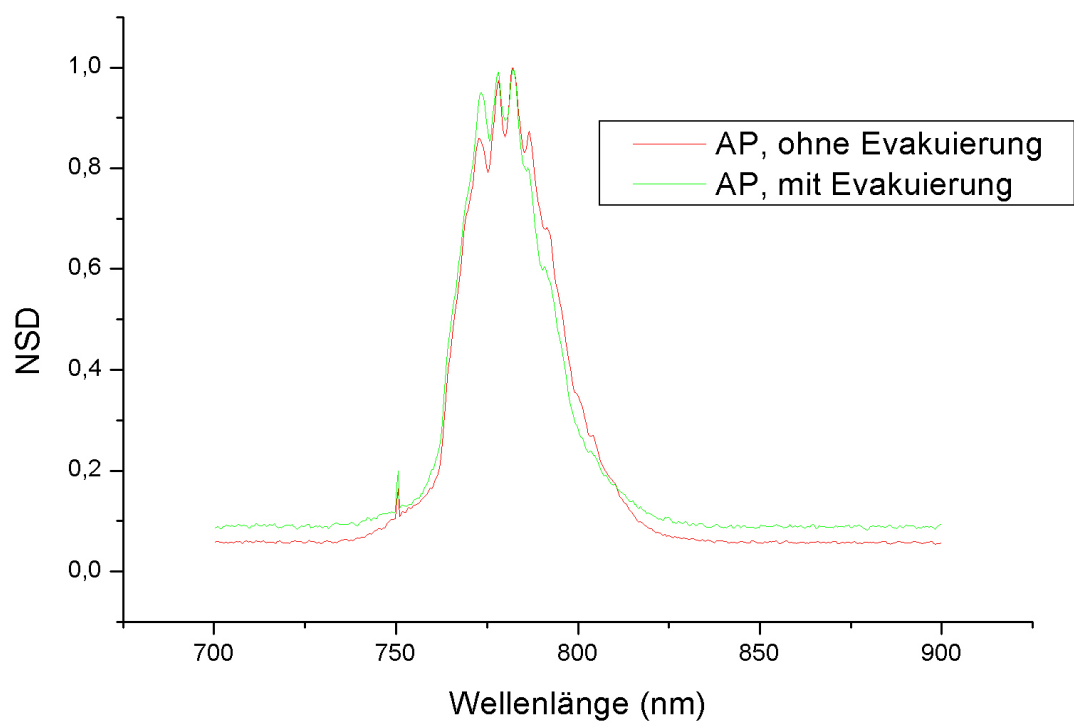


**Abbildung 4.3:** Messung in Luft: Vergleich zwischen einem Spektrum bei voller Ausgangsleistung des Lasers und reduzierter Leistung. Die Reduzierung wurde durch ein einfaches "Ausschneiden" des inneren Teils der Pulse mittels einer Iris-Blende bewerkstelligt; eine Evakuierung fand hierbei noch nicht statt.



**Abbildung 4.4:** Das Spektrum in Luft bei verschiedenen Linsen-Positionen und inklusive Evakuierung. Die Ausgangsposition ist die Referenz, von der aus das Linsen-Paar um 6 bzw. 12 Zoll (") (von der Kammer weg) verschoben wird. Die Filamentation sollte hierbei umso weiter vorne innerhalb der Kammer (zur Eingangsseite hin) einsetzen.





**Abbildung 4.5:** Das Spektrum an der Ausgangsposition mit und ohne Evakuierung hinter dem Stopper.

## 4.3 Spektrum und FROG bei verschiedenen Argon-Drücken

Mit der nun zur Verfügung stehenden FROG-Apparatur konnten Messungen (vor allem der Pulsdauer) parallel zu Aufnahmen des Spektrums vorgenommen werden. Dabei wurde nochmals das Pulsverhalten bei unterschiedlichen Drücken untersucht (wiederum ohne Stopper bzw. Vakuum).

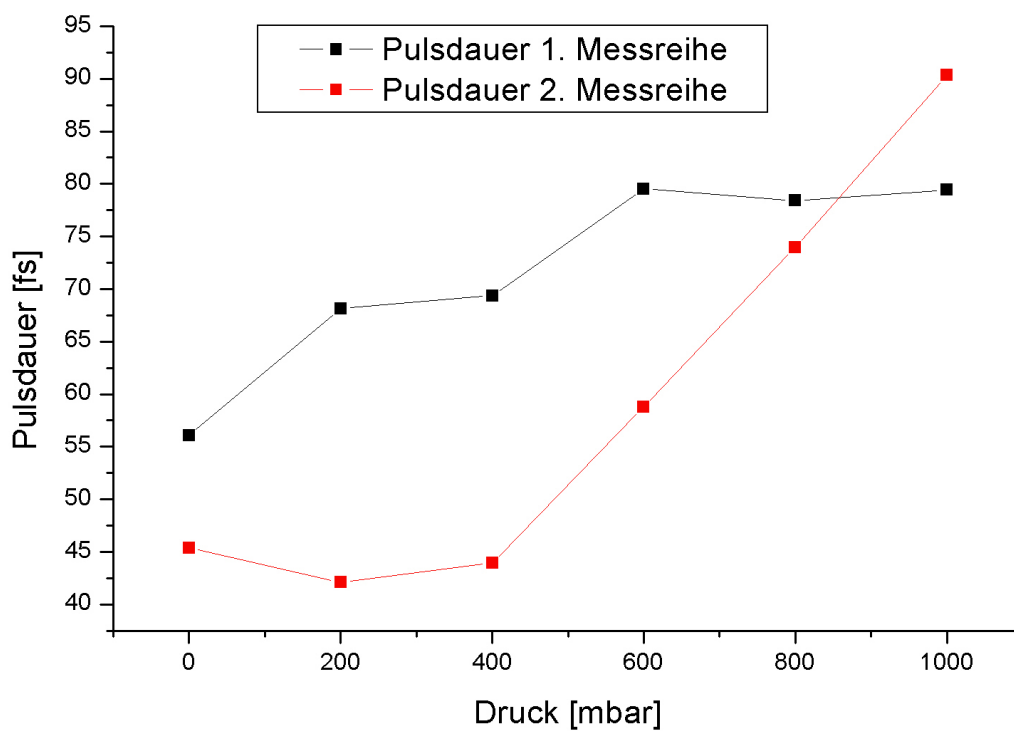
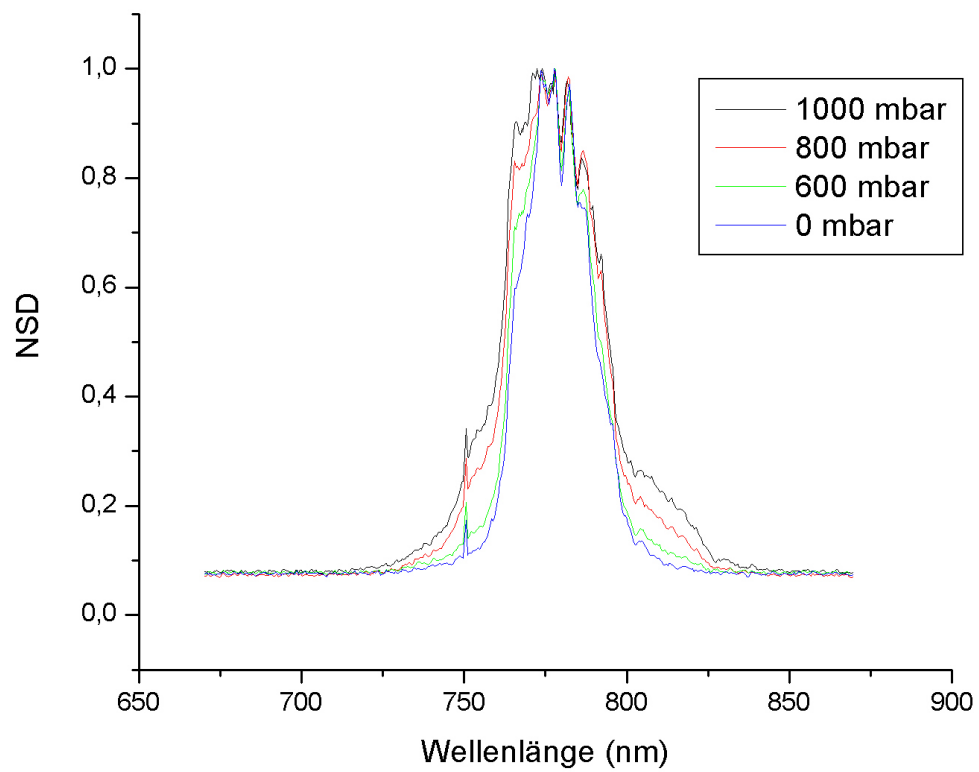


Abbildung 4.6: Die gemessene Pulsdauer in Abhängigkeit vom Druck für zwei verschiedene Messreihen.



**Abbildung 4.7:** Zum Vergleich (mit der Pulsdauer) das Spektrum für einige Druckwerte aus der zweiten Messreihe. Die erreichte spektrale Verbreiterung liegt deutlich unter der in Abb. 4.1 gezeigten.

## 4.4 Spektrum und FROG bei Verschiebung der Linsen.

Nun wurden die Messungen in der Weise durchgeführt, wie sie in Kapitel 3.3 beschrieben ist: Argon wird an der Eingangsseite eingelassen und hinter dem Stopper abgepumpt. Für jeden Messpunkt wird zuvor eine Referenzmessung ohne Evakuierung durchgeführt.

Man verschiebt die Linsen von einer gewissen Referenzposition (nicht identisch mit der aus Kapitel 4.2!) aus mit einem Inkrement von 5 Zoll, dieses Mal zur Kammer hin.

Die Laserleistung lag erneut bei gut 5 Watt.

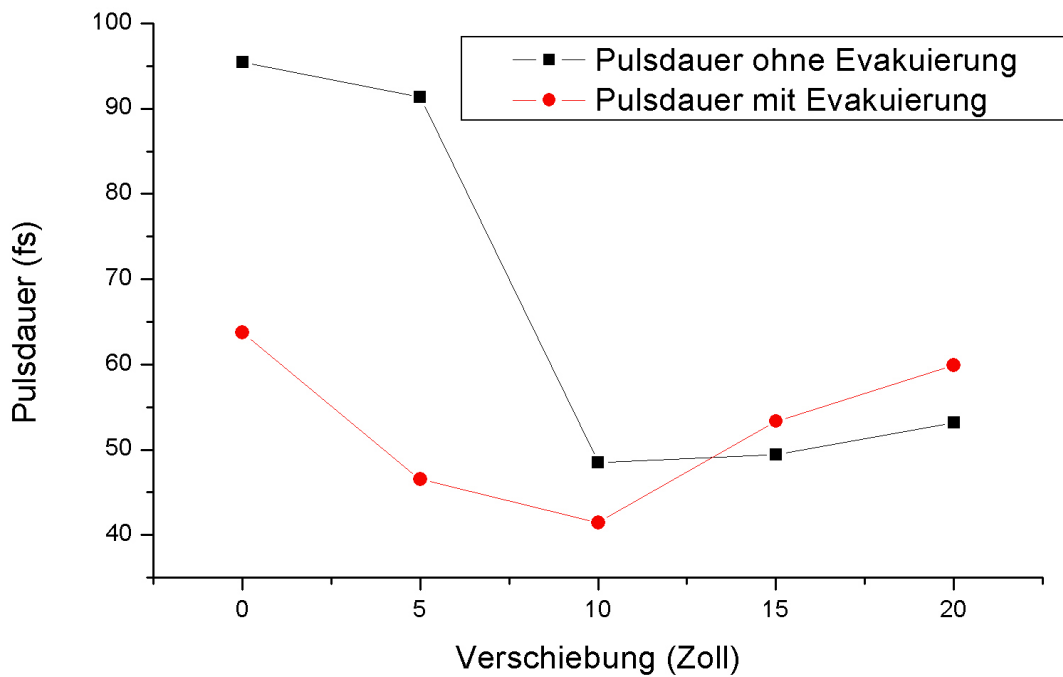
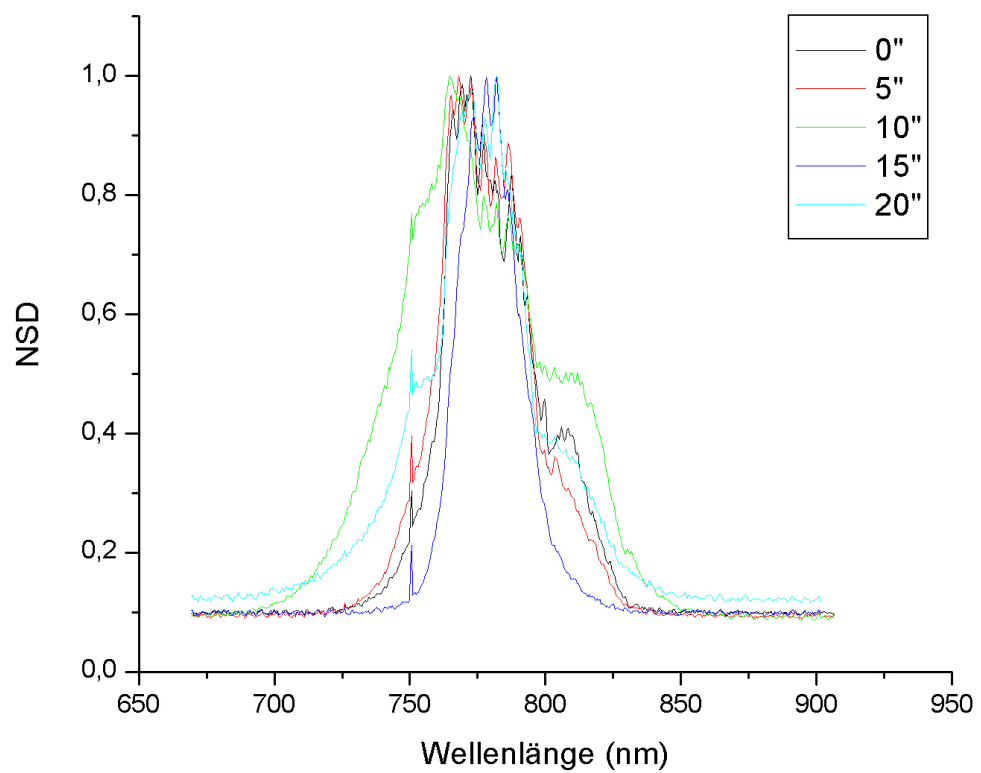


Abbildung 4.8: Gemessene Pulsdauer für unterschiedliche Linsen-Positionen.



**Abbildung 4.9:** Die Spektren für die unterschiedlichen Positionen ohne Evakuierung.

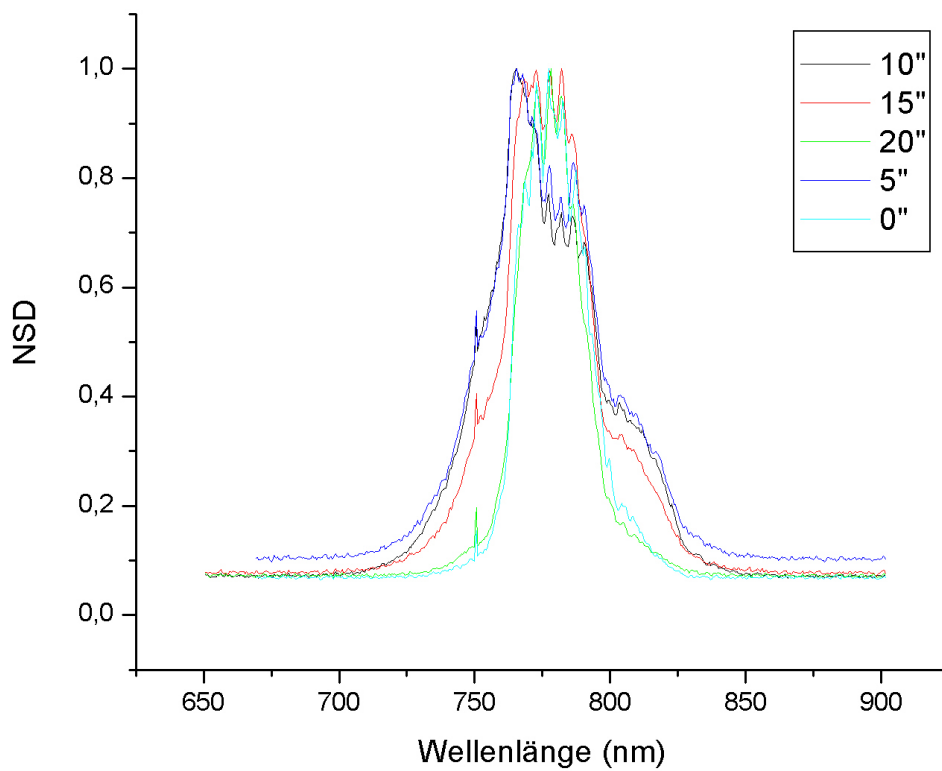
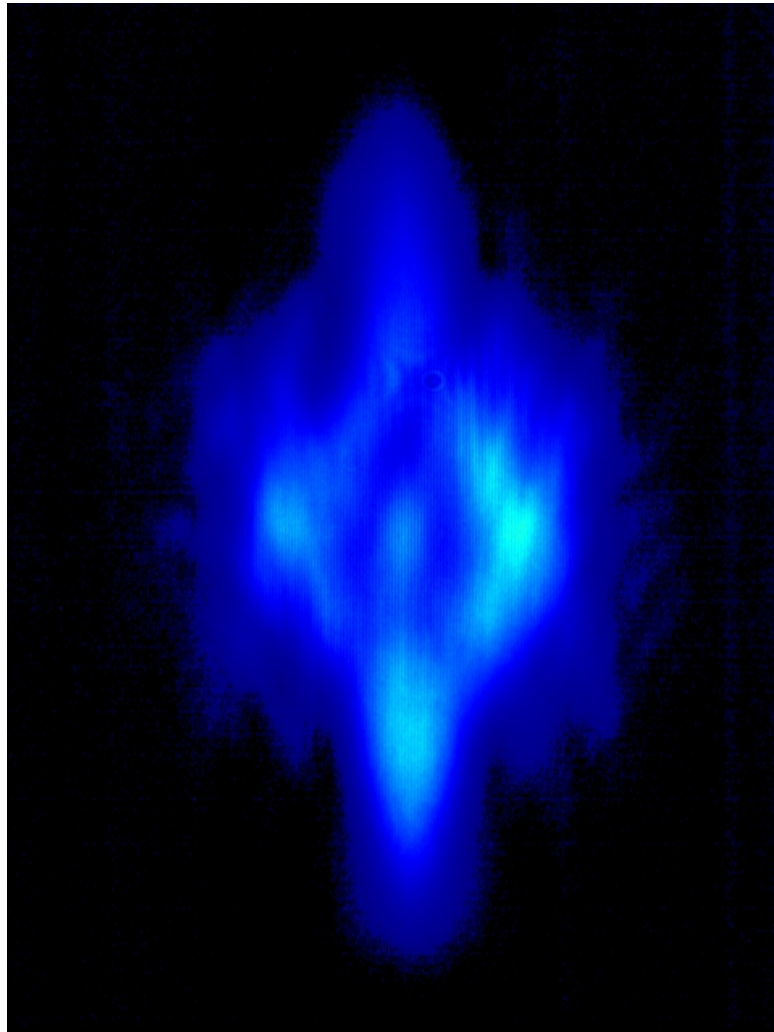


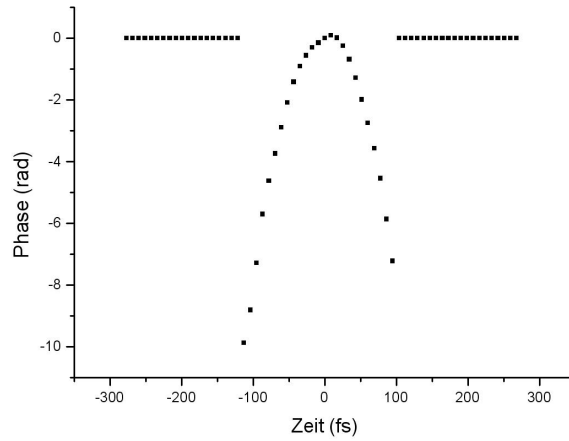
Abbildung 4.10: Die Spektren bei Evakuierung hinter dem Stopper.

## 4.5 FROG-Spur und Phasenverlauf eines Pulses

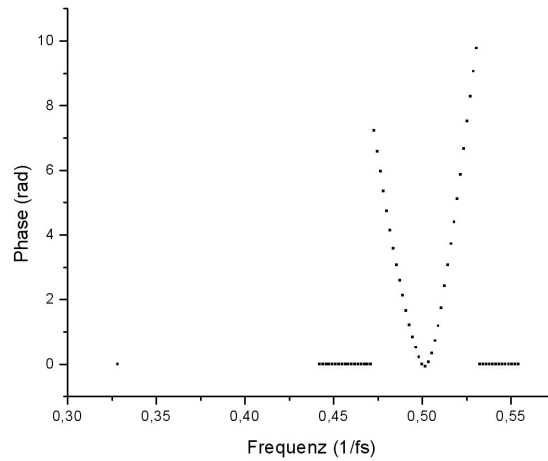
Das FROG-System bietet neben der Messung der Pulsdauer zudem die Möglichkeit, den Verlauf der Phase in Abhängigkeit von der Zeit wie auch der Frequenz zu bestimmen. Im folgenden sind für einen besonders breitbandigen Puls, den bei einer Verschiebung von 10 Zoll inklusive Evakuierung, die FROG-Spur und die erwähnten Phasenverläufe dargestellt.



**Abbildung 4.11:** Die FROG-Spur, also das Spektrogramm, des genannten Pulses. Horizontal verläuft die Zeitverzögerung, vertikal die Frequenz; die Helligkeit gibt die gemessene Intensität an.



**Abbildung 4.12:** Die Phase des Pulses als Funktion der Zeit. Der parabelförmige Verlauf ist typisch für einen (in diesem Falle positiv) gechirpten Puls.



**Abbildung 4.13:** Der Phasenverlauf in Abhängigkeit von der Frequenz bestätigt den "chirp" des Pulses.





# Kapitel 5

## Diskussion

Ich möchte lieber eine einzige Ursache begreifen als der König von Persien sein.

---

*(Demokrit von Abdera)*

### **Aufbau:**

Während der Messungen zeigten sich bei der Vakuumtechnik, besonders bezüglich des Gas-Recyclings, einige Probleme. Prinzipiell handelte es sich bei dem Recycling-System um eine eher provisorische Lösung, die innerhalb weniger Tage erdacht, konstruiert und getestet wurde (Zeitmangel, Wechsel des Betreuers) - man könnte durchaus auch von einem "Zusammenschustern" reden. Bereits nach kurzem Betrieb mit flüssigem Stickstoff wurde der Argon-Zufluss stark behindert, da offenbar das im Stickstoff-dewar befindliche Kupfer-Verbindungsrohr (6 mm Dicke) im Inneren schnell zufror und den Gasdurchfluss verhinderte. Als schnelle Alternative wurde eine besonders große Kühlfalle (ehemals für eine Titan-Sublimationspumpe) getestet, bei der sich aber der enorme Verbrauch an Flüssig-Stickstoff als inakzeptabel herausstellte; als Konsequenz wurde sodann die Kühlfalle umgangen. Das folgende Problem war der beträchtliche Öl-Ausstoß der Pumpen, durch den trotz eines Filters am Auspuff Öl in die Kammer gelangte. Folge war, dass sich nach einiger Zeit dort ein Ölnebel bildete. Dieser ließ sich zwar bei unterbrochenem Recycling (Argon direkt zur Abluft geleitet) größtenteils abpumpen, führte aber sofort zum vollständigen Abschied von der Recycling-Idee: Da nämlich beim Durchgang der Laserpulse Öltröpfchen auf den Fenstern getroffen würden, könnte die folgende Hitzeentwicklung die Fenster schädigen. Nun war auch der Plastiksack nicht mehr vonnöten und so wurde letztlich das Argon direkt in die Kammer geleitet und der Pumpenausgang direkt mit der Abluft verbunden, ein hoher Argon-Verbrauch also toleriert.

Weiterhin erwähnenswert ist:

- Die Befürchtungen hinsichtlich der für die dünnen Fenster eventuell gefährlichen Druck-

differenz zwischen Kammer und Umgebung bewahrheiteten sich (praktischerweise) nicht. Die Kappen zum Schutz bei der Evakuierung stellten sich also als unnötig heraus.

- Das kleine Röhrchen zur Verbesserung des Vakuums hinter dem Stopper brachte keine wirklich signifikanten Vorteile und erschwerte zudem das Durchführen der Laserpulse bei nicht ganz perfekter Ausrichtung. Es wurde letzten Endes nicht mehr verwendet.

### **Messungen:**

Als wesentliches Problem für die Messungen stellte sich die Frage nach der Position des Filaments heraus. Leider konnte das Filament nur in wenigen Fällen direkt beobachtet werden, sodass vor allem Anfang und Ende nicht genau auszumachen waren. Trotz Minimierung des Umgebungslichts und Benutzung unterschiedlicher Laser-Schutzbrillen war nur bei einer der Messungen das Filament (besser: sein Streulicht) als ein sehr schwach leuchtender Faden wahrnehmbar. Folglich musste man einfach davon ausgehen, dass der Beginn des Filaments in der Nähe des Laserfokus liegen würde. In Hinblick auf die Funktion des Evakuierens hinter dem Stopper war also praktisch nie wirklich klar, an welcher Stelle das Filament (beim Übergang von Normaldruck zu Vakuum) aufgelöst wird<sup>1</sup> bzw. über welche Distanz es überhaupt durch das Gas "läuft". Erschwerend kommt hinzu, dass sich das Filament zudem auch frühzeitig durch Energieverluste von selbst auflösen kann. Die ganze Problematik setzt also eine Reihe von Fragezeichen hinter die gewonnenen Daten.

### **Ergebnisse:**

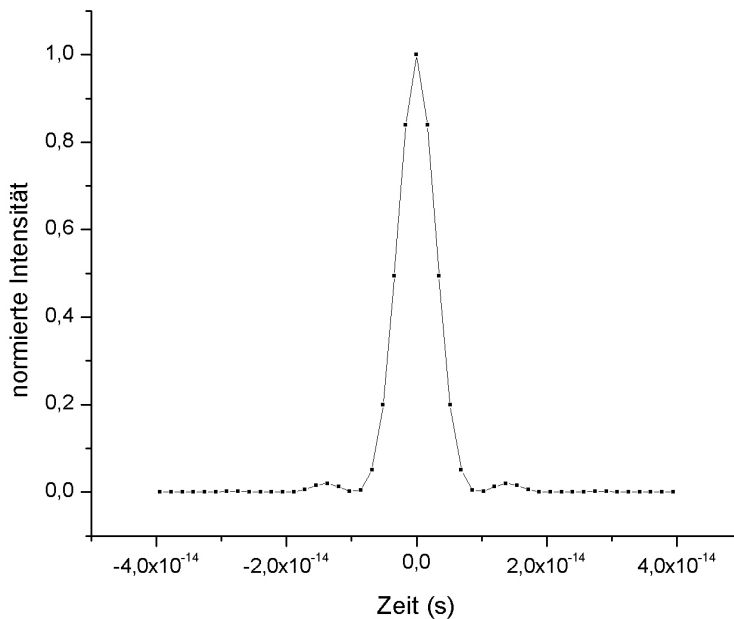
- Die Messungen an Luft lieferten generell nur sehr geringe Unterschiede in den gewonnenen Spektren. Insbesondere ist nur eine minimale Verbreiterung zu erkennen und auch die Verschiebung der Linien scheint keinen großen Effekt zu haben. Man könnte nun zwar zur Überlegung gelangen, dass in diesem Fall überhaupt kein Filament entstanden ist, allerdings waren es gerade diese Messungen, bei denen es mit eigenen Augen sichtbar war! Somit bildet sich zwar offenbar ein Filament in der Kammer aus, der Mechanismus zur spektralen Verbreiterung scheint aber wenig effektiv zu sein.
- In einer Reihe von Spektren ist ein Peak bei rund 750 nm zu erkennen, dessen Ursprung nicht bekannt ist. Er taucht in Argon- wie auch in Luft-Spektren auf, was nicht auf eine bestimmte Emissionslinie hindeutet. Seine extreme Höhe in Abbildung 4.3 bei reduzierter Leistung ist lediglich auf die Normierung zurückzuführen (Spektrum wird "aufgeblasen").
- Kommen wir schlussendlich zum hauptsächlichen Zweck der Untersuchungen zurück,

---

<sup>1</sup>Dies geschieht natürlich nicht abrupt, da doch ein nicht allzu steiler Druckgradient im Bereich des Stoppers vorherrscht.

der Verkürzung der Pulsdauer infolge der Filamentation. Die Ergebnisse aus Kapitel 4.4 zeigen bei den Spektren und der gemessenen Pulsdauer ein ähnliches Verhalten: Bei Verschiebung der Linsen (mit Evakuierung) verbreitert sich zunächst das Spektrum und die Pulsdauer sinkt. Nach Erreichen der stärksten Verbreiterung bzw. kleinsten Pulsdauer geht die Entwicklung aber wieder in die umgekehrte Richtung. Nun könnte man annehmen, dass demnach ein Mechanismus existiert, der nach einer gewissen spektralen Verbreiterung im Filament einen Teil der Frequenzen wieder "auffrisst". Hierbei sollte jedoch Vorsicht geboten sein, da wie erwähnt nicht wirklich klar war, in welchem Raumbereich das Filament tatsächlich verläuft.

Entscheidend ist in unserem Fall allerdings weniger die durch die FROG-Apparatur gemessene Pulsdauer, als die bei der erreichten spektralen Verbreiterung theoretisch mögliche Pulsdauer. Wie die FROG-Daten in Kapitel 4.5 zeigen, trägt jeder Puls einen merklichen "chirp", der den Puls zeitlich auseinanderzieht. Um eine deutliche Verkürzung gegenüber den Eingangspulsen zu erreichen, müsste man mit sog. "gechirpten Spiegeln" (kompensieren den chirp) eine Rekompensation durchführen. Eine ungefähre Ahnung von der möglichen Pulsdauer gibt die Fourier-Transformation des Spektrums, wie sie unten an einem Beispiel gezeigt ist.



**Abbildung 5.1:** Fourier-Transformation des Spektrums (in Argon) bei einer Verschiebung von 10 Zoll inklusive Evakuierung. Die geschätzte Pulsdauer (FWHM) beträgt demnach grob 7 fs, was jedoch angesichts der Bandbreite-Begrenzung eindeutig zu kurz erscheint. Andererseits ist auch die Ungenauigkeit relativ groß, sodass mit dieser Methode keine wirklich präzise Aussage möglich ist.



# Abbildungsverzeichnis

1.1	Zeitskala kurzer physikalischer Vorgänge (aus [9]) . . . . .	6
1.2	Muybridges Bewegungsstudie des Pferdegallops ("Le galop de Daisy") in "La Nature" 1878 . . . . .	6
2.1	Entdeckung der ATI: Energiespektrum emittierter Elektronen bei $8 \cdot 10^{12} \frac{W}{cm^2}$ (Kreise). Die Energiedifferenz zwischen beiden Peaks entspricht der Energie eines der eingestrahnten Photonen (2.34 eV). Die Dreiecke gehören zu einer Vergleichsmessung mit anderer Photonenenergie und Intensität (aus [14]). . .	13
2.2	Schema der ATI: hier ist K die minimal nötige Photonenzahl, S die Zahl der zusätzlichen ("above threshold") Photonen und $E_i$ die Bindungsenergie (aus [11]). . . . .	14
2.3	Das Potential eines Wasserstoffatoms bekommt in einem (statischen) elektrischen Feld einen Sattelpunkt, durch den ein gebundenes Elektron tunnelt kann (aus [17]). . . . .	15
2.4	Berechnete Einfach-Ionisationsraten von $N_2$ - und $O_2$ -Molekülen, die entlang der Feldrichtung ausgerichtet sind, im Verhältnis zu zufällig ausgerichteten [22].	17
2.5	Veranschaulichung der OTBI: Potential im Wasserstoffatom mit einem überlagerten Feld der Intensität $10^{13} \frac{W}{cm^2}$ (links) und $1,4 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$ (rechts). Ab der kritischen Intensität $I_{OTBI}$ unterschreitet die Barriere die potentielle Energie des Elektrons. (aus [23]) . . . . .	18
2.6	$Xe^+$ - und $Xe^{2+}$ -Ionenrate als Funktion der Laserintensität (aus [24]) . . . . .	18
2.7	Kernabstand und kinetische Energie des Elektrons nach der Ionisation in Abhängigkeit von der Laserphase $\alpha = \omega_0 t$ für verschiedene Ionisationszeitpunkte bzw. -phasen $\alpha_0 = \omega_0 t_0$ (aus [26]). . . . .	19
2.8	Recollision-Energie (als Vielfaches von $U_p$ ) und Ionisationswahrscheinlichkeit (Tunnelionisation im Wasserstoff) als Funktion des Ionisationszeitpunktes (aus [16]). . . . .	20
2.9	Ionisation-Propagation-Rekombination: Das Elektron tunnelt durch die Potentialbarriere, entfernt sich vom Kern und kehrt wieder zurück. Bei der Rekombination entsteht höherenergetische Strahlung ( $\omega_{XUV}$ ) (aus [28]). . . . .	20
2.10	Bei zirkularer Polarisation ist keine Rekombination von Ion und Elektron (hier als Wellenpaket dargestellt) möglich (aus [28]). . . . .	21

2.11	Vergleich experimenteller Werte für die Helium-Ionisation mit der ADK-Theorie. Zweifach positive Ionen treten entgegen der Theorie schon bei geringeren Intensitäten verstärkt auf (aus [31]). . . . .	22
2.12	Mit dem Recollision-Modell berechnete Rate der einfach (links) und doppelt (rechts) geladenen Heliumionen als Funktion der Laserintensität. Verwendet wird ein ca. 100 fs kurzer Laserpuls mit räumlich wie zeitlich gaußförmigem Profil (aus [25]). . . . .	23
2.13	Entstehung des Rotations-Raman-Spektrums. Bei der unteren Darstellung liegt im Zentrum ( $\bar{\nu}_p$ ) die Rayleigh-Linie infolge elastischer Streuung; links sind die sog. Stokes- ( $\bar{\nu} - \bar{\nu}_p$ negativ), rechts die Antistokes-Linien ( $\bar{\nu} - \bar{\nu}_p$ positiv) zu sehen (aus [32]). . . . .	24
2.14	Gebundene und ungebundene Zustände in der Potentialdarstellung (aus [33])	25
2.15	Zum Franck-Condon-Prinzip: Da sich bei Elektronenübergängen die Kernabstände nur unwesentlich ändern, erfolgen diese Übergänge im Potentialdiagramm überwiegend vertikal. Eine Schwingungsanregung erfolgt vom Grundzustand aus am wahrscheinlichsten in einen Schwingungszustand, bei dem das Maximum seiner Wellenfunktion senkrecht darüber liegt (aus [32]). . . . .	26
2.16	Entstehung von Molekülorbitalen (aus Atomorbitalen) sowie deren Elektronenbesetzung am Beispiel von Stickstoff und Sauerstoff (Grundzustand). Wesentliche Neuerung gegenüber Atomen ist die Quantenzahl $\lambda = 0,1,2\dots$ für die Projektion des Drehimpulses auf die Molekülachse, welche den Orbitalen die Bezeichnungen $\sigma, \pi, \delta\dots$ verleiht. Zudem muss zwischen bindenden und antibindenden (*) Orbitalen unterschieden werden. Pfeile stehen für die zwei möglichen Spinrichtungen (aus [32]). . . . .	27
2.17	Kontur-Plot der Elektronendichte für das jeweils äußerste Orbital von $N_2$ (links) bzw. $O_2$ (aus [30]). . . . .	27
2.18	Oben: Mögliche Konfigurationen der zwei äußersten Elektronen im Sauerstoff-Molekül, unten: Die unterschiedlichen Energielevels der entsprechenden Zustände (aus [32]). . . . .	28
2.19	Durch einen Laserpuls angeregtes Rotationswellenpaket für die elektronischen Grundzustände von LiH aufgetragen gegen die Zeit und den Euler-Winkel $\Theta$ (bezüglich Polarisationsrichtung). Der Puls ist gaußförmig mit einer Länge von ca. 100fs und einer Intensität von $10^{11} \frac{W}{cm^2}$ . Die Kurve links oben zeigt die zeitliche Entwicklung der mittleren Drehimpulsquantenzahl $\bar{J}$ (aus [35]). . . . .	29
2.20	Revival-Struktur für $N_2$ -Moleküle (aus [39]). . . . .	31
2.21	Die Winkelabhängigkeit der Ionisationswahrscheinlichkeit für $N_2$ -Moleküle: Zu sehen sind experimentelle Winkelverteilungen ( $dN(\theta)/d\theta$ ) im Falle einer (a) maximalen Ausrichtung entlang des Feldes (horizontale Polarisation) und (b) Ausrichtung senkrecht zum Feld (aus [38]). . . . .	31
2.22	Beispiel für das elektrische Feld eines ultrakurzen Laserpulses samt seiner Einhüllenden (aus [40]). . . . .	32

2.23	Die Wellenlängenabhängigkeit des Brechungsindex von Quarzglas und die verschiedenen Regionen der "group velocity dispersion" (aus [42]). . . . .	34
2.24	Wirkung der Selbstfokussierung in einem nichtlinearen Medium auf einen gaußförmigen Intensitätsverlauf. Entscheidend ist dabei die zunehmende Krümmung der Phasenflächen bei der Propagation zur rechten Seite hin (aus [44]).	36
2.25	Die Wirkung der zwei für die Kanalisierung im wesentlichen verantwortlichen Prozesse. Links die Selbstfokussierung infolge des Kerr-Effekts, rechts die durch die Photoionisation verursachte Defokussierung (aus [46]). . . . .	38
2.26	Die wichtigsten der auf die zeitliche Pulsstruktur wirkenden Prozesse. . . . .	39
3.1	Zufällige vs. feste Phasenbeziehungen und die daraus resultierende Strahlungsform (aus [55]). . . . .	43
3.2	Wirkung eines sättigbaren Absorbers auf einen kurzen Laserpuls (aus [7]). . .	44
3.3	Verstärkung vs. Absorption bei sättigbaren Absorbern (aus [7]). . . . .	44
3.4	Schematischer Gesamtaufbau des eingesetzten Laser-Systems. . . . .	45
3.5	Absorptions- und Emissionsspektrum von Ti:Saphir (aus [56]). . . . .	45
3.6	Konfiguration der sog. "X-Kavität" des Ti:Sa-Oszillators (aus [42]). . . . .	46
3.7	Das Prinzip der CPA im Überblick (aus [59]). . . . .	47
3.8	Prinzipieller Aufbau eines Multipass-Verstärkers (aus [53]). . . . .	48
3.9	Schema des pump-probe-Aufbaus. . . . .	49
3.10	Der pump-probe-Aufbau als Fotografie. Da das Experiment nicht weitergeführt wurde, ist hier weder eine Photodiode noch ein Element zum Abschwächen des pump-Pulses integriert. . . . .	50
3.11	Die einzelnen Schritte des Experiments. . . . .	52
3.12	Das Linsensystem samt der relevanten Größen und Formeln zu ihrer Berechnung. . . . .	53
3.13	Schema der Filament-Kammer mit Stopper. . . . .	54
3.14	Die Kammer zum Aufbau eines Druckgradienten. . . . .	55
3.15	Filament-Kammer mit angeschlossenem Vakuum-System. Durch die Zeolith-Falle lässt sich ein guter Teil des von den Pumpen ausgestoßenen Öls einfangen, welches andernfalls in die Verbindungsschläuche zur Filament-Kammer hin gelangen würde. Der Gasfluss durch den Stopper und das anschließende Abpumpen bedeuten einen hohen Verbrauch an Argon, weswegen ein Recycling-System aufgebaut wurde. Dabei dient ein simpler Plastiksack als Druckausgleich-Behältnis, während mit Hilfe des flüssigen Stickstoffs Verunreinigungen ausgefroren werden sollen. . . . .	56
3.16	Ein positiv linear "gechirpter" Puls (Frequenz steigt mit der Zeit linear an) (aus [63]). . . . .	57
3.17	Die Torfunktion selektiert einen Teil von $E(t)$ , dessen Spektrum dann gemessen wird. Dies geschieht über die gesamte Pulsform $E(t)$ hinweg und für alle Werte $\tau$ (wodurch die Position des Tores bestimmt wird) (aus [64]). . . . .	58



3.18	Experimenteller Aufbau einer FROG-Messung in der "SHG"-Geometrie (second harmonic generation) (aus [64]). . . . .	59
3.19	Schema des Algorithmus zur Bestimmung von Intensität und Phase eines Pulses. . . . .	60
4.1	Ein direkter Vergleich der Kurven bei Drücken von 0 bzw. 1000 mbar zeigt unmittelbar eine deutliche spektrale Verbreiterung. . . . .	64
4.2	Spektrum in Argon: Durch die Einbeziehung einiger Zwischenwerte ist eine zunehmende Verbreiterung mit steigendem Druck zu erkennen. . . . .	65
4.3	Messung in Luft: Vergleich zwischen einem Spektrum bei voller Ausgangsleistung des Lasers und reduzierter Leistung. Die Reduzierung wurde durch ein einfaches "Ausschneiden" des inneren Teils der Pulse mittels einer Iris-Blende bewerkstelligt; eine Evakuierung fand hierbei noch nicht statt. . . . .	66
4.4	Das Spektrum in Luft bei verschiedenen Linsen-Positionen und inklusive Evakuierung. Die Ausgangsposition ist die Referenz, von der aus das Linsen-Paar um 6 bzw. 12 Zoll (") (von der Kammer weg) verschoben wird. Die Filamentation sollte hierbei umso weiter vorne innerhalb der Kammer (zur Eingangsseite hin) einsetzen. . . . .	67
4.5	Das Spektrum an der Ausgangsposition mit und ohne Evakuierung hinter dem Stopper. . . . .	68
4.6	Die gemessene Pulsdauer in Abhängigkeit vom Druck für zwei verschiedene Messreihen. . . . .	69
4.7	Zum Vergleich (mit der Pulsdauer) das Spektrum für einige Druckwerte aus der zweiten Messreihe. Die erreichte spektrale Verbreiterung liegt deutlich unter der in Abb. 4.1 gezeigten. . . . .	70
4.8	Gemessene Pulsdauer für unterschiedliche Linsen-Positionen. . . . .	71
4.9	Die Spektren für die unterschiedlichen Positionen ohne Evakuierung. . . . .	72
4.10	Die Spektren bei Evakuierung hinter dem Stopper. . . . .	73
4.11	Die FROG-Spur, also das Spektrogramm, des genannten Pulses. Horizontal verläuft die Zeitverzögerung, vertikal die Frequenz; die Helligkeit gibt die gemessene Intensität an. . . . .	74
4.12	Die Phase des Pulses als Funktion der Zeit. Der parabelförmige Verlauf ist typisch für einen (in diesem Falle positiv) gechirpten Puls. . . . .	75
4.13	Der Phasenverlauf in Abhängigkeit von der Frequenz bestätigt den "chirp" des Pulses. . . . .	75
5.1	Fourier-Transformation des Spektrums (in Argon) bei einer Verschiebung von 10 Zoll inklusive Evakuierung. Die geschätzte Pulsdauer (FWHM) beträgt demnach grob 7 fs, was jedoch angesichts der Bandbreite-Begrenzung eindeutig zu kurz erscheint. Andererseits ist auch die Ungenauigkeit relativ groß, sodass mit dieser Methode keine wirklich präzise Aussage möglich ist. . . . .	79

# Literaturverzeichnis

- [1] W. Demtröder, *Experimentalphysik 3* (Springer Verlag, 2005).
- [2] M. Kaku, *Hyperspace - Einsteins Rache* (Byblös Verlag, 1995).
- [3] A. Einstein, "Über einen die Erzeugung und Verwandlung des Lichtes betreffenden heuristischen Gesichtspunkt," *Annalen der Physik* 17, 132-148 (1905).
- [4] M. Göppert-Mayer, *Über Elementarakte mit zwei Quantensprüngen*, Ph.D. thesis, Universität Göttingen (1931).
- [5] G. Voronov and N. Delone, Engl. trans. *Sov. Phys. JETP* 23, 54 (1966).
- [6] H. Mocker and R. Collins, "MODE COMPETITION AND SELF-LOCKING EFFECTS IN A Q-SWITCHED RUBY LASER," *Appl. Phys. Letter* 7, 270 (1965).
- [7] C. Rullière, *Femtosecond Laser Pulses* (Springer Verlag, 1998).
- [8] B. Röthlein, "Am Puls des Moleküls," "Welt der Physik" (2002/03).
- [9] M. Wollenhaupt, "Grundlagen der Femtochemie," Vorlesung SS 2005 Universität Kassel.
- [10] L. V. Keldysh, "Ionization in the field of a strong electromagnetic wave," Engl. trans. *Sov. Phys. JETP* 20, 5 (1965).
- [11] N. Delone and V. Krainov, *Multiphoton processes in atoms* (Springer Verlag, 1994).
- [12] K. Burnett, V. Reed, and P. Knight, "Atoms in ultra-intense laser fields," *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* 26 561-598 (1993).
- [13] L. Lompre, G. Mainfray, C. Manus, and J. Thebault, "Multiphoton ionization of rare gases by a tunable-wavelength 30-psec laser pulse at 1.06  $\mu\text{m}$ ," *Phys. Rev. A*, 15:1604 (1977).
- [14] J. F. Grasbon, *Atomare Prozesse in starken Laserfeldern*, Ph.D. thesis, Universität München (2001).
- [15] P. Agostini, F. Fabre, G. Mainfray, G. Petite, and N. Rahman, "Free-Free Transitions Following Six-Photon Ionization of Xenon Atoms," *Phys. Rev. Lett.* 42, 1127 (1979).
- [16] M. Protopapas, C. Keitel, and P. Knight, "Atomic physics with super-high intensity lasers," *Rep. Prog. Phys.* 60 389-486 (1997).
- [17] R. Freeman and P. Bucksbaum, "Investigations of above-threshold ionization using sub-picosecond laser pulses," *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 24, 325-347 (1991).

- [18] S. Chin, F. Yergeau, and P. Lavigne, "Tunnel ionisation of Xe in an ultra-intense  $CO_2$  laser field ( $10^{14} \frac{W}{cm^2}$ ) with multiple charge creation," J. Phys. B: At. Mol. Phys. 18 L213-L215 (1985).
- [19] M. V. Ammosov, N. Delone, and V. Krainov, Sov. Phys. JEPT 64, 1191 (1986).
- [20] A. Talebpour, C. Chien, and S. Chin, "The effects of dissociative recombination in multiphoton ionization of  $O_2$ ," J. Phys. B 29, L677 (1996).
- [21] M. DeWitt, E. Wells, and R. Jones, "Ratiometric Comparison of Intense Field Ionization of Atoms and Diatomic Molecules," Phys. Rev. Lett. 87, 153001 (2001).
- [22] X. M. Tong, Z. X. Zhao, and C. D. Lin, "Theory of molecular tunneling ionization," PHYSICAL REVIEW A 66, 033402 (2002).
- [23] B. Ulrich, *Pump-Probe Experimente zur Ionisation von diatomaren Molekülen*, Master's thesis, Universität Frankfurt (2005).
- [24] W. Xiong and S. Chin, Sov. Phys. JETP 62,268 (1991).
- [25] P. B. Corkum, "Plasma Perspective on Strong-Field Multiphoton Ionization," Phys. Rev. Lett. 71, 13, 1994 (1993).
- [26] A. Staudte,  *$D_2$  in ultrakurzen, hochintensiven Laserpulsen*, Master's thesis, Universität Frankfurt (2001).
- [27] A. Scrinzi, M. Ivanov, R. Kienberger, and D. Villeneuve, "Attosecond physics," J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 39, R1–R37 (2006).
- [28] L. Yang, Z. Yang, H. Chu, C.-H. Lee, J.-Y. Lin, J. Wang, and S.-Y. Chen, "High harmonic generation in atomic gas and cluster gas," Presentation at PSROC 2005 (Physical Society of Republic of China).
- [29] G. Mainfray and C. Manus, "Multiphoton ionization of atoms," Rep. Prog. Phys. 54, 1333-1372 (1991).
- [30] S. Voss, *Orientierungseffekte bei der Doppelionisation von kleinen Molekülen*, Master's thesis, Universität Frankfurt (2004).
- [31] D. Fittinghoff, P. Bolton, B. Chang, and K. Kulander, "Observation of Nonsequential Double Ionization of Helium With Optical Tunneling," Phys. Rev. Lett. 69, 18, 2642-2645 (1992).
- [32] H. Haken and H. Wolf, *Molekülphysik und Quantenchemie* (Springer Verlag, 1998).
- [33] [http : //www.ieap.uni - kiel.de/plasma/ag - stroth/lehre/physik/HTML/f20 - 05.html](http://www.ieap.uni-kiel.de/plasma/ag-stroth/lehre/physik/HTML/f20-05.html).
- [34] D. Villeneuve, S. Aseyev, P. Dietrich, M. Spanner, M. Ivanov, and P. Corkum, "Forced Molecular Rotation in an Optical Centrifuge," Phys. Rev. Lett. 85, 3, 542-545 (2000).
- [35] T. Seideman, "Rotational excitation and molecular alignment in intense laser fields," J. Chem. Phys. 103, 18 (1995).

- 
- [36] H. Stapelfeldt and T. Seideman, "Colloquium: Aligning molecules with strong laser pulses," *Reviews of Modern Physics*, Volume 75, 543-557 (2003).
- [37] T. Seideman, "Revival Structure of Aligned Rotational Wave Packets," *Phys. Rev. Lett.* 83, 4971 (1999).
- [38] I. Litvinyuk, K. Lee, P. Dooley, D. Rayner, D. Villeneuve, and P. Corkum, "Alignment-Dependent Strong Field Ionization of Molecules," *Phys. Rev. Lett.* 90, 233003-1 (2003).
- [39] P. Dooley, I. Litvinyuk, K. Lee, D. Rayner, M. Spanner, D. Villeneuve, and P. Corkum, "Direct imaging of rotational wave-packet dynamics of diatomic molecules," *Phys. Rev. A* 68, 023406 (2003).
- [40] <http://www.physics.gatech.edu/gcuo/lectures/UF003UltrashortpulsesI.ppt>.
- [41] J.-C. Diels and W. Rudolph, *Ultrashort Laser Pulse Phenomena* (Academic Press, 1996).
- [42] <http://heart-c704.uibk.ac.at/LV/Laserspektroskopie/SS05/KurzePulse.pdf>.
- [43] E. Hecht, *Optik* (Oldenbourg Verlag, 2005).
- [44] <http://www.e11.ph.tum.de/downloads/schelm.pdf>.
- [45] Encyclopedia of Laser Physics and Technology,  
<http://www.rp-photonics.com/encyclopedia.html>.
- [46] C. Hauri, W. Kornelis, F. Helbing, A. Heinrich, A. Couairon, A. Mysyrowicz, J. Biegert, and U. Keller, "Generation of intense, carrier-envelope-locked few-cycle laser pulses through filamentation," *Appl. Phys. B* 79, 673-677 (2004).
- [47] J. Kasparian, R. Sauerbrey, and S. Chin, "The critical intensity of self-guided light filaments in air," *Appl. Phys. B* 71, 877-879 (2000).
- [48] P. Sprangle, E. Esarey, and J. Krall, "Self-guiding and stability of intense optical beams in gases undergoing ionization," *Phys. Rev E*, 54, 4 (1996).
- [49] E. A. Gibson, *Quasi-Phase Matching of Soft X-ray Light from High-Order Harmonic Generation using Waveguide Structures*, Ph.D. thesis, University of Colorado (2004).
- [50] A. Couairon, J. Biegert, C. Hauri, W. Kornelis, F. Helbing, U. Keller, and A. Mysyrowicz, "Self-compression of ultra-short laser pulses down to one optical cycle by filamentation," *Journal of Modern Optics*, Vol. 53, Nos. 1-2, 75-85 (2006).
- [51] J. Kasparian, M. Rodriguez, G. Méjean, J. Yu, E. Salmon, H. Wille, R. Bourayou, S. Frey, Y.-B. André, A. Mysyrowicz, R. Sauerbrey, J.-P. Wolf, and L. Wöste, "White-Light Filaments for Atmospheric Analysis," *Science* 301, 61 (2003).
- [52] U. Keller, "Recent developments in compact ultrafast lasers," *Nature* Vol.424, 831-838 (2003).
- [53] S. Backus, C. Durfee III, M. Murnane, and H. Kapteyn, "High power ultrafast lasers," *Review of Scientific Instruments* 69, 3 (1998).

- [54] A. Kasper, *Erzeugung und Charakterisierung ultrakurzer Lichtpulse aus Titan:Saphir Laser-Oszillatoren*, Ph.D. thesis, Max-Planck-Institut für Quantenoptik (1997).
- [55] <http://www.physics.gatech.edu/gcuo/lectures/UF002Generation.ppt>.
- [56] <http://micro.magnet.fsu.edu/primer/java/lasers/tsunami/index.html>.
- [57] <http://www.physics.gatech.edu/gcuo/lectures/UF005Dispersion.ppt>.
- [58] M. Smolarski, *Ionisation von N<sub>2</sub> und O<sub>2</sub> in starken Laserfeldern*, Master's thesis, Universität Frankfurt (2004).
- [59] [http://en.wikipedia.org/w/index.php?title=Chirped\\_pulse\\_amplification&oldid=62891844](http://en.wikipedia.org/w/index.php?title=Chirped_pulse_amplification&oldid=62891844).
- [60] KMLabs Dragon Laser Brochure,  
<http://www.kmlabs.com/downloads/dragon/Dragon%20datasheet%2005%2007.pdf>.
- [61] D. Hahn and S. Wagner, *Kohlrausch Praktische Physik I* (Teubner Verlag, 1985).
- [62] [http://www.wmi.badw.de/teaching/Lecturenotes/Physik3/Gross\\_Physik\\_III\\_Kap\\_4.pdf](http://www.wmi.badw.de/teaching/Lecturenotes/Physik3/Gross_Physik_III_Kap_4.pdf).
- [63] <http://www.physics.gatech.edu/gcuo/lectures/FROGpresentation.ppt>.
- [64] <http://www.physics.gatech.edu/gcuo/Tutorial/FROG.html>.
- [65] R. Trebino, K. DeLong, D. Fittinghoff, J. Sweetser, M. Krumbügel, B. Richman, and D. Kane, "Measuring ultrashort laser pulses in the time-frequency domain using frequency-resolved optical gating," *Rev. Sci. Instrum.* 68 (9) (1997).
- [66] R. Trebino and D. Kane, "Single-shot measurement of the intensity and phase of an arbitrary ultrashort pulse by using frequency-resolved optical gating," *Optics Letters* 18,10,823-825 (1993).

## Ein Dankeschön geht an :

- Professor Reinhard Dörner für die freundliche Aufnahme in seine Arbeitsgruppe und jederzeit verfügbare Hilfe bei allem von den vertracktesten Schwierigkeiten der Quantenmechanik bis zu den trivialsten Problemen (ich erinnere an die Beschaffung eines Brettes für eine Holzkiste zur Versendung nach Jordanien).
- Die gesamte Arbeitsgruppe Atomphysik wegen der ausnahmslos großen Hilfsbereitschaft und positiven Atmosphäre, insbesondere:
  - Meinen Betreuer Mathias Smolarski wegen seiner äußerst netten Art sowie der Geduld und Offenheit hinsichtlich aller Fragen und Probleme ("es gibt keine dummen Fragen"). *Adiós, Maciek!*
  - Achim Czasch für die Hilfe auf den "ersten Metern" bei der C++-Programmierung.
  - Lothar Schmidt, der dank seiner "Omni-Kompetenz" bei den verschiedensten Dingen mit Rat und Tat und sehr ausführlichen Auskünften zur Seite stehen konnte.
  - Lutz Foucar für die entscheidende Unterstützung bei der Programmierung der delay-stage.
  - Kyra Cole für die unermüdliche Arbeit (man sollte es vielleicht eher als Kampf bezeichnen) am Laser-System, insbesondere in den frustrierenden Phasen.
  - Jeden "Bewohner" (früher und heute) von Raum 01.313 für das stets angenehme und kollegiale Klima.
  - Moritz Meckel, der immer wieder ein interessanter Diskussionspartner war und stets großes Interesse an meiner Diplomarbeit zeigte.
  - Alle Teilnehmer der (Doppel-)Strahlzeit im März 2007 in Berlin (3. Woche), die für einen sowohl lehrreichen als auch (von gewissen, besonders nachts auftretenden technischen Problemen abgesehen) unterhaltsamen Aufenthalt gesorgt haben.
  - Klaus Ullmann-Pfleger für die nette, allzeit verfügbare Hilfe bei jeglichen IT-Problemen.
  - Alle Teilnehmer der EAS-Tagung 2007 in Rietzlern (Nadine, Tilo, Hong-Keun, Odi, Nikos, Rui), bei der natürlich insbesondere auch die Aktivitäten außerhalb des Seminarraums (speziell auf der Skipiste!) besonders "geil" waren.
- Die Herren Dölfert und Ziel -die "Beschleuniger-Mannschaft"- für die Hilfe bei allen kleinen und großen Problemen, speziell beim Thema Vakuumtechnik.
- Meinen Kommilitonen Ali Haydar Alcin, Sebastian Belz und Mark Dias für die vielen gemeinsamen Mensa-Besuche inklusive spaßiger Kartenspiele.
- Alle ungenannten Helden, die sonst irgendwie direkt oder indirekt zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

**Special thanks to :**

Prof. Zenghu Chang for his friendly and highly competent support in the final phase of my diploma time, especially during the measurements.